

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-059161

(43)Date of publication of application : 06.03.2001

(51)Int.Cl.

C23C 14/24

H05B 33/10

H05B 33/14

(21)Application number : 11-233463

(71)Applicant : TDK CORP

(22)Date of filing : 20.08.1999

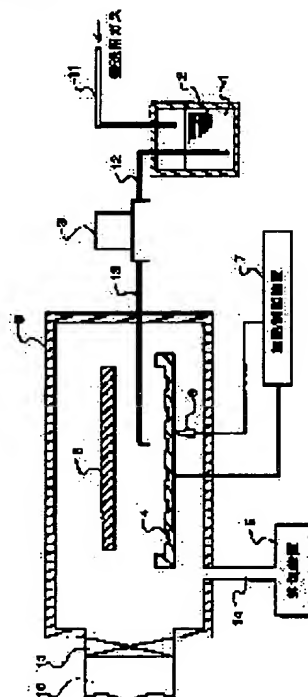
(72)Inventor : TANABE HIROSHI  
YAMAMOTO HIROSHI  
ARAI MICHIO

## (54) DEVICE FOR PRODUCING ORGANIC THIN FILM AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a device for producing an organic thin film that the distance can be set shortly between an evaporating source and a substrate corresponding to a substrate of a relatively large area, a material corresponding to a film forming content for one time can be fed to, easily and selectively execute painting operation, moreover it can cope with mixtures and doped organic materials and furthermore it can cope with vapor deposition at a relatively low temperature, and to provide a method for producing it.

**SOLUTION:** This device for producing an organic thin film has a raw material feeding source 2 feeding a raw material soln. 1 in which an organic material is dissolved in a solvent, a feeding atm. controlling means 3 controlling a raw material soln. from the raw material feeding source to a fixed atm. and feeding it, a vaporizing means vaporizing the fed raw material soln. and a substrate 5 in which the vaporized raw material is deposited, and a film is formed, and the vaporizing means has an evaporating dish 4 stored with the fed raw material soln. by a prescribed amt. and a heating means of heating the raw material soln. stored into the evaporating dish to a temp. higher than the vaporizing temp. of the organic material.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

## \* NOTICES \*

**Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] About the manufacturing installation and the manufacture methods of an organic thin film of an organic EL element, such as a composition thin film, in detail, this invention evaporates the organic-material matter by heating, and relates to the manufacturing installation and the manufacture method of the organic thin film using the vacuum deposition which forms a thin film by making this deposit on the membrane formation field on a substrate.

[0002]

[Description of the Prior Art] The vacuum deposition method is known as one of the basic technology which performs thin film formation. This vacuum deposition method forms a thin film within a vacuum tub, combining an evaporation source and the substrate for membrane formation suitably. Current is passed to a metal vessel with comparatively high electric resistance (metal boat) which the means which makes an evaporation source is also considered variously, for example, is indicated by Applied Physics Letter. Vol.68, No.16, and 15 April 1996 P2276-2278, and the so-called resistance heating vacuum deposition which evaporates a raw material by the generation of heat is known. Moreover, a direct electron beam and a laser beam are irradiated at a raw material, and the so-called electron beam laser-beam vacuum deposition which evaporates a raw material with the energy is known. The membrane formation method (resistance heating vacuum deposition) which used resistance heating especially has the simple composition of a manufacturing installation, and it has spread widely from good thin film formation being realizable by the low price.

[0003] A resistance heating vacuum deposition processes metallic materials, such as a high tungsten of the melting point, a tantalum, and molybdenum, in the shape of sheet metal, produces a raw material container (metal boat) from the metal plate which made electric resistance high, passes a direct current from the ends, evaporates a raw material using the generation of heat, and supplies evaporative gas. A part of gas which emitted deposits on a substrate, and a thin film is formed.

[0004] By the way, the evaporation source used by these vacuum depositions can be approximated as a point evaporation source. By JP,10-335062,A, in order to make the thin film of uniform thickness form in the substrate of a large area, distance between evaporation-source-substrates is enlarged, a substrate is rotated and the technique of carrying out offset arrangement of the evaporation source from the substrate center of rotation is examined. However, since the distance between evaporation-source-substrates is separated by this technique, it is difficult to use an expensive organic material efficiently. Moreover, the false field evaporation source using two or more evaporation sources needs to arrange the thickness controller for keeping constant the vapor rate of the material from each evaporation source, and was difficult to realize.

[0005] Moreover, since the distance between evaporation-source-substrates was separated, when offset arrangement of the evaporation source was carried out, it was difficult [ it ], although methods, such as using a shadow mask, were common when forming some kinds of organic thin films for every separate field on one substrate or forming membranes only to a specific field for the thickness of a shadow mask to make a shadow and to distinguish by different color with to a detailed pattern. Moreover, if it is going to perform mask vacuum evaporatio, without performing offset arrangement and rotation of a substrate, it will be necessary to take a large distance between evaporation-source-substrates further, and the use efficiency of an organic material will fall further.

[0006] In recent years, the organic EL element is studied briskly. This makes a thin film hole transportation material, such as a triphenyl diamine (TPD), by vacuum evaporatio on a hole pouring electrode. With the element which has the basic composition which made the luminous layer fluorescent substances, such as an aluminum quinolinol complex (Alq3), furthermore carried out the laminating, and formed the metal electrode with the still smaller work function of Mg etc. (electron-injection electrode) It is number several 100 to 10000 cd/m2 at the voltage before and behind 10V. It is observed by very high brightness being obtained.

[0007] It faces manufacturing the product adapting the organic EL element conventionally, and the functional thin film by the organic material is formed using the above vacuum depositions. In such a mass-production process, productivity is high and it is an important technical problem how moreover use efficiency of material is made high. However, the manufacturing installation using conventional vacuum evaporatio equipment had the bad use efficiency of material, and was difficult to distinguish by different color at the time of consuming an expensive organic material vainly or obtaining the full color display of RGB with, for work to be complicated, to distinguish by different color with, and to make precision high.

[0008]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The purpose of this invention is corresponding to the substrate of a comparatively big

area, being able to work easily by it being possible to set up the distance's between evaporation-source-substrates short, supply of the material corresponding to one membrane formation being possible, and an organic thin film being able to distinguish by different color with, being able to respond also to mixture or the doped organic material, and realizing the manufacturing installation and the manufacture method of an organic thin film which can moreover comparatively respond also to the vacuum evaporation of low temperature.

[0009]

[Means for Solving the Problem] The above-mentioned purpose is realized by the composition of the following (1) - (9).

- (1) The source of feeding which supplies the raw material solution which the organic material is dissolving into a solvent, An amount-of-supply adjustment means to adjust and supply the raw material solution from this source of feeding to a constant rate, It has an evaporation means to evaporate the supplied raw material solution, and the substrate by which the vaporized raw material is formed by depositing. the aforementioned evaporation means The manufacturing installation of the organic thin film which has a heating means to heat the raw material solution stored by the evaporating dish which carries out the specified quantity reservoir of the supplied raw material solution, and this evaporating dish to temperature higher than the evaporation temperature of the organic material.
- (2) The manufacturing installation of the organic thin film of the above (1) whose distance from the best end face of the raw material solution currently stored by the aforementioned evaporation means to a membrane formation side is 10-160mm.
- (3) The aforementioned evaporating dish is the manufacturing installation of the above (1) in which two or more crevices for storing raw material liquid are formed, or the organic thin film of (2).
- (4) The crevice of the aforementioned evaporating dish is the manufacturing installation of the organic thin film of the above (3) connected by the raw material liquid route, respectively.
- (5) The heating temperature by the aforementioned heating means is the manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (4) which is 200-500 degrees C.
- (6) The aforementioned heating means is the manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (5) which is a halogen lamp.
- (7) The aforementioned heating means is the manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (5) which is the resistance heating heater by which adhesion formation was carried out at least at the pars basilaris ossis occipitalis of an evaporating dish.
- (8) The aforementioned amount-of-supply adjustment means is the manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (7) which performs control of flow of a raw material solution with a mass-flow control method, controls the supply time of this raw material solution, and adjusts the amount of supply.
- (9) The aforementioned amount-of-supply adjustment means is the manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (7) which adjusts the amount of supply with a dispenser method.
- (10) The manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (9) which has a pressure regulation means for setting up more highly than the pressure at the time of evaporation of a solvent and an organic material the equipment internal pressure at the time of the aforementioned raw material solution supply.
- (11) The aforementioned pressure regulation means is the manufacturing installation of the organic thin film of the above (10) which performs pressure regulation by supplying inert gas in equipment.
- (12) The aforementioned organic material is the manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (11) which is two or more sorts of organic intermixing-of-material objects.
- (13) The manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (5) which forms an organic EL-element composition thin film.
- (14) Manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (13) which has the alignment adjustment mechanism of the aforementioned substrate (15) The aforementioned alignment adjustment mechanism is the manufacturing installation of the organic thin film of the above (14) which adjusts a relative position with the shadow mask by which contiguity arrangement was carried out to a substrate and this substrate.
- (16) The aforementioned substrate is the manufacturing installation of one organic thin film of above-mentioned (1) - (15) whose maximum length is 200-1000mm.
- (17) The above (1) The manufacture method of the organic thin film which forms membranes using one manufacturing installation of - (16).

[0010]

[Embodiments of the Invention] The source of feeding which supplies the raw material solution with which the organic material is dissolving the manufacturing installation of the organic thin film of this invention into a solvent, An amount-of-supply adjustment means to adjust and supply the raw material solution from this source of feeding to a constant rate, It has an evaporation means to evaporate the supplied raw material solution, and the substrate by which the vaporized raw material is formed by depositing. the aforementioned evaporation means It has a heating means to heat the raw material solution stored by the evaporating dish which carries out the specified quantity reservoir of the supplied raw material solution, and this evaporating dish to temperature higher than the evaporation temperature of the organic material.

[0011] Thus, keeping a thickness distribution good by dissolving into a solvent the organic material which forms membranes, adjusting and supplying this raw material solution to the specified quantity, holding this on the evaporating dish as a field evaporation source, heating this, evaporating and forming membranes, distance between evaporation-source-substrates can be

shortened and the use efficiency of material improves. Moreover, while being able to perform film composition and adjustment of thickness correctly, continuous membrane formation is attained.

[0012] The source of feeding holds the raw material solution dissolved into the organic solvent, and supplies this if needed. As such a source of feeding, what is necessary is just a container, a tank, etc. which can store the raw material solution of the specified quantity. What is necessary is not to limit especially the configuration or size and just to make them into a suitable capacity and a configuration if needed. Moreover, although especially the quality of the material is not limited, either, it is required to be the last matter which it would react and would be combined with the organic material of a raw material moreover, without dissolving in an organic solvent or being corroded.

[0013] The raw material solution held by the source of feeding dissolves the organic material used as a raw material in an organic solvent. Desired thickness can be easily obtained only by evaporating all the supplied raw material solutions, without being able to control easily the amount of supply of the raw material to an evaporation means appropriately, and performing the thickness control of a direct vacuum evaporation film by dissolving an organic material into a solvent.

[0014] The organic mixture thin film of a desired mixing ratio can be obtained only by evaporating a raw material solution, without controlling a direct evaporation rate, if it adjusts beforehand by the ratio of concentration of a request of two or more sorts of organic materials and is made to dissolve into a solvent at this time.

[0015] It is not limited especially if it is the matter which can form membranes by the gaseous-phase depositing method as an organic material used as a raw material, and various organic materials can be used. For example, pi-electron conjugated-system organic-semiconductor matter, such as molecular crystal of chain macromolecules, such as a polyacetylene and a polyyne, or the poly acenes (anthracene etc.) metallurgy group chelate compounds (copper phthalocyanine etc.), The compound which serves as donors, such as an anthracene, diethylamines, p-phenylene diamine, tetramethyl-p-phenylene diamine (TMPD), and tetrapod thio full BAREN (TTF) The electron donor acceptor complex which consists of compounds used as acceptors, such as a tetracyano quinodimethan (TCNQ), a tetracyanoethylene (TCNE), and p-crawil anil, etc., coloring matter material, fluorescence material, liquid crystal material, etc. can be mentioned.

[0016] Especially as evaporation temperature of these organic materials, about 200-400 degrees C is usually desirable about 150-500 degrees C under the atmospheric pressure at the time of membrane formation. Moreover, when using two or more sorts of material, it is necessary to heat more than the highest evaporation temperature. Moreover, it is necessary to heat by the decomposition temperature of the material to be used. As concentration of the organic material in a solvent, 0.1 - 50wt%, especially about 5-20wt% are desirable.

[0017] Also in these organic materials, if the organic material of an organic EL-element composition film is used especially, a good result can be obtained. Although the composition films of an organic EL element are a hole pouring transporting bed, a luminous layer, an electron-injection transporting bed, etc., these composition thin films, especially a luminous layer need control of exact thickness and composition. Therefore, it becomes controllable [ control of exact thickness, and composition ] by using the equipment of this invention, and the quality of an organic EL element improves, and while being stabilized, it also becomes possible to offer the new element which was further excellent in the performance.

[0018] As an organic substance used for the luminous layer of an organic EL element, the fluorescence nature matter which is the compound which has a luminescence function can be mentioned. At least one sort chosen from compounds, such as a compound which is indicated by JP,63-264692,A, for example, a Quinacridone, rubrene, and styryl system coloring matter, as such fluorescence nature matter, for example is mentioned. moreover, quinoline derivatives, such as metal complex coloring matter which makes a ligand eight quinolinols, such as tris (8-kino RINORATO) aluminum, or the derivative of those, a tetrapod phenyl butadiene, an anthracene, a perylene, a coronene, and a 12-phthaloperi -- non, a derivative etc. is mentioned Furthermore, the phenyl anthracene derivative of a publication, the tetrapod aryl ethene derivative of JP,8-12969,A (Japanese Patent Application No. No. 114456 [ six to ]), etc. can be used for JP,8-12600,A (Japanese Patent Application No. No. 110569 [ six to ]).

[0019] Moreover, it may be used combining the host substance and dopant which can emit light by itself. Thereby, the luminescence wavelength property of a host substance can be changed, and while luminescence which shifted to long wavelength is attained, the luminous efficiency and stability of an element improve. The contents of the compound in the luminous layer in such a case are 0.01 to 20 volume %, and further 0.1 to 15 volume % preferably.

[0020] As a host substance, a kino RINORATO complex is desirable and the aluminum complex which makes an eight quinolinol or its derivative a ligand further is desirable. As such an aluminum complex, what is indicated by JP,63-264692,A, JP,3-255190,A, JP,5-70733,A, JP,5-258859,A, JP,6-215874,A, etc. can be mentioned.

[0021] First specifically Tris (8-kino RINORATO) aluminum, screw (8-kino RINORATO) magnesium, Screw ({BENZO f}-8-kino RINORATO) zinc, a screw (2-methyl-8-kino RINORATO) aluminum oxide, A tris (8-kino RINORATO) indium, tris (5-methyl-8-kino RINORATO) aluminum, 8-kino RINORA tritium, a tris (5-chloro-8-kino RINORATO) gallium, There are screw (5-chloro-8-kino RINORATO) calcium, 5, 7-dichloro-8-kino RINORATO aluminum, tris (5, 7-dibromo-8-hydroxy kino RINORATO) aluminum, poly [zinc (II)-screw (8-hydroxy-5-kino RINIRU) methane], etc.

[0022] As other host substances, a phenyl anthracene derivative given in JP,8-12600,A (Japanese Patent Application No. No. 110569 [ six to ]), a tetrapod aryl ethene derivative given in JP,8-12969,A (Japanese Patent Application No. No. 114456 [ six to ]), etc. are desirable.

[0023] Moreover, as for a luminous layer, it is also desirable to consider as the mixolimnion of at least one sort of hole pouring transportability compounds and at least one sort of electron-injection transportability compounds if needed, and it is desirable to make a dopant contain in this mixolimnion further. As for the content of the compound in such a mixolimnion, it is desirable to

consider as 0.01 to 20 volume % and further 0.1 to 15 volume %.

[0024] What is necessary is just to choose respectively the hole pouring transportability compound and electron-injection transportability compound which are used for a mixolimnion from the compound of the below-mentioned hole pouring transportability, and the compound of electron-injection transportability. It is still more desirable to use the amine derivative which had strong fluorescence as a compound of hole pouring transportability especially, for example, the triphenyl diamine derivative which is hole transportation material, and a styryl amine derivative and an amine derivative with the aromatic condensed ring.

[0025] As a compound of electron-injection transportability, it is desirable to use a quinoline derivative, the metal complex which makes an eight quinolinol or its derivative a ligand further, especially tris (8-kino RINORATO) aluminum (Alq3). Moreover, it is also desirable to use the above-mentioned phenyl anthracene derivative and a tetrapod aryl ethene derivative.

[0026] Although the mixing ratio in this case is based on each carrier mobility and carrier concentration, generally, the weight ratio of a compound which has the compound / electron-injection transportation function of a hole pouring transportability compound is desirable to 1 / 99 - 99/1, and a pan, and it is desirable to make it 10 / 90 - 90/10, and become about 20 / 80 to 80/20 preferably especially.

[0027] Moreover, the thickness of a mixolimnion is more than the thickness equivalent to a molecular-layer monostromatic, and it is desirable to carry out to under the thickness of an organic compound layer. It is desirable to specifically be referred to as 1-85nm, and it is desirable to be especially referred to as 5-50nm further 5-60nm.

[0028] The various organic compounds indicated by JP,63-295695,A, JP,2-191694,A, JP,3-792,A, JP,5-234681,A, JP,5-239455,A, JP,5-299174,A, JP,7-126225,A, JP,7-126226,A, JP,8-100172,A, and the EP0650955A1 grade can be used for a hole pouring transporting bed. For example, they are a tetrapod aryl BENJISHIN compound (a triaryl diamine or triphenyl diamine : TPD), the third class amine of aromatic series, a hydrazone derivative, a carbazole derivative, a triazole derivative, an imidazole derivative, the OKISA diazole derivative that has an amino group, the poly thiophene, etc. Even if only one sort is used for these compounds, they may use two or more sorts together. What is necessary is to make it another layer, to carry out a laminating or just to mix, when using two or more sorts together.

[0029] Quinoline derivatives, such as an organometallic complex which makes a ligand eight quinolinols, such as tris (8-kino RINORATO) aluminum (Alq3), or the derivative of those, an OKISA diazole derivative, a perylene derivative, a pyridine derivative, a pyrimidine derivative, a quinoxaline derivative, a diphenyl quinone derivative, a nitration fluorene derivative, etc. can be used for an electron-injection transporting bed.

[0030] As a solvent in which an organic material is dissolved, an organic solvent is desirable and should just use the optimal thing according to the kind of organic material to dissolve. In addition, it is required to be the matter which dissolves neither the component of the source of feeding nor the component of passage, and is not corroded. Especially as the boiling point, about 60-100 degrees C is desirable 50-150 degrees C. Specifically, a tetrahydrofuran (THF) etc. is desirable.

[0031] For a feeding means, it has a conveyance means to convey a raw material solution besides being a container for holding the above-mentioned raw material solution etc. This conveyance means can be used choosing it suitably from well-known means by which it is used in order to move a liquid. Specifically, make mechanical pressure, such as a liquid pump, apply and convey, a pressure is applied to a raw material solution with gases, such as air or inert gas, or the method of conveying with this etc. is mentioned. Also in these, the thing using a gaseous pressure is fit for exact flow control. as the gas used for conveyance -- inert gas, such as air, and Ar, Ne, Xe, Kr, and N2 etc. -- it can mention -- the inside of these -- N2 etc. -- it is desirable

[0032] Although especially the pump used by the need is not limited and just sends out a fluid by the predetermined pressure, what does not dissolve in an organic solvent or does not deteriorate by this is desirable. Specifically, a centrifugal pump, a bellows pump, a roller pump, etc. can be used.

[0033] An amount-of-supply adjustment means adjusts the amount of supply of the raw material solution supplied, and it is made to serve as the optimal amount of supply. Although the thing which adjusts what has the function to send out and convey a raw material solution by itself by restricting the flow rate of the raw material solution beforehand supplied from the feeding means, or which thing is sufficient as an amount-of-supply adjustment means, it is desirable that it is what can adjust the exact amount of supply.

[0034] Since vacuum evaporatio thickness is controlled by controlling the amount of supply of a liquid, an exact thickness control becomes possible with comparatively easy composition, and, moreover, futility of expensive raw materials, such as an organic material, can be lessened.

[0035] What is necessary is just to specifically control by control systems, such as a mass-flow C-system, using the amount regulator valve of variable flow, and a flowmeter. As a flowmeter, although a mass flowmeter is desirable, a differential pressure type flowmeter, an area flowmeter, a positive displacement flowmeter, an electromagnetic flowmeter, a turbine meter, a vortex flowmeter, etc. can be used as occasion demands.

[0036] Moreover, the dispenser system which combined an opening-and-closing bulb, a gas feeding pressure-control means, and time-control meanses, such as a timer, may adjust the amount of supply. In this case, you may establish a conductance adjustment means with a needle etc. all over passage. Conductance control means may be controlled by changing the bore of the needle valve prepared all over the conveyance way, and may be controlled by adjusting the opening of a needle valve.

[0037] Especially as a flow rate of the raw material solution adjusted by the amount-of-supply adjustment means, although not limited, a minute is usually especially desirable in about 1.0-50ml /by 0.1-100ml/. As a precision of a controllable flow rate, what can be adjusted in \*\*, especially 0.5% or less of range is usually desirable \*\*1% or less.

[0038] A raw material evaporation means heats and evaporates the supplied raw material solution, and supplies it to a membrane formation side. That is, a raw material evaporation means usually has a heating means to heat the raw material solution stored by the evaporating dish which carries out the specified quantity reservoir of the supplied raw material solution, and this evaporating dish to temperature higher than the evaporation temperature of the organic material.

[0039] An evaporating dish holds and stores the supplied raw material solution uniformly. Although it is not limited especially if it is the size which can cover a membrane formation side as a size of a raw material pan, it is usually desirable that it is larger than a substrate.

[0040] When you need thickness uniform to the edge of a substrate especially, it is effective to make the size of an evaporating dish larger than the appearance of a substrate. In this case, although the optimum value changes with distance between an evaporating dish and a substrate, 40-160mm is usually especially desirable [ the horizontal distance from the edge of a substrate to the edge of an evaporating dish ] 20-200mm.

[0041] as the capacity of the raw material liquid stored in an evaporating dish -- desirable -- 0.1-100cm<sup>3</sup> -- more -- desirable -- 1-50cm<sup>3</sup> It is a grade. Although the configuration of an evaporating dish may also be a square box-like thing even if it is a cylinder-like, it is usually box-like [ in alignment with the substrate configuration / square ].

[0042] Predetermined temperature is borne as a material which constitutes an evaporating dish, and it will not be limited especially if it reacts neither with an organic solvent nor an organic material. What is used as the quality of the material for crucibles is specifically desirable, for example, refractory metals, such as ceramics, such as a PAIRO rye tick boron nitride (PBN), an alumina, and a silicon carbide (SiC), a quartz, etc. and a tungsten, a tantalum, molybdenum, are mentioned. Moreover, for a low reason, metallic materials, such as stainless steel and aluminum, also have the comparatively usable evaporation temperature of an organic solvent or an organic material. When it thinks from the field of heat responsibility especially, PBN, SiC, a metallic material, etc. are desirable, and a metallic material is desirable when it takes into consideration to a cost side further.

[0043] Moreover, if the raw material solution is uneven in the evaporating dish, the thickness distribution formed becomes easy to vary. For this reason, the evaporating dish needs to be kept level and, as for especially the levelness, it is usually desirable that it is 0.1mm or less 0.5mm or less. Usually, when two or more crevices are formed in the base of the liquid-pool side of an evaporating dish, or this, the flat surface which connects these bases can estimate levelness.

[0044] You may establish a levelness adjustment mechanism if needed. A levelness adjustment mechanism may be a hand-regulation mechanism in which it has levelness detection meanses, such as level, and a levelness adjustment means by which the micrometer head, the set bolt, etc. were applied, and may be an automechanism which is equipped with control means, such as a processor, and performs these adjustment operations automatically.

[0045] As for an evaporating dish, it is desirable that the distance from the position used as the best end face of the raw material solution stored or evaporation datum level to the membrane formation side of a shell substrate is 20-120mm especially 10-160mm. If a thickness distribution becomes less uniform when distance is shorter than this range, and distance becomes long, the use efficiency of material will get worse.

[0046] When the area of an evaporating dish is large, you may form two or more crevices in the pars basilaris ossis occipitalis. In this case, as for the crevice to form, it is good to form so that it may arrange at a fixed interval. Although the supplied raw material solution is held and stored by each crevice, a raw material solution may be supplied or the structure of an evaporating dish may be determined such so that the raw material solutions on each crevice may be connected and the oil level of a raw material solution may be united exceeding the upper-limit section of a crevice.

[0047] In order to make uniform the raw material solution held and stored by each crevice, you may have the raw material liquid route which connects each crevice. A slot or a pipe can constitute this raw material liquid route. In this case, as for the depth of flute or the depth of opening of a pipe, it is desirable that it is shallower than the depth of a crevice. As for the path or width of face of the width of face of a slot, or a pipe, it is desirable that it is narrower than the width of face of a crevice.

[0048] As a size of a crevice, although based also on the size of the whole evaporating dish, usually, it is made a diameter, and 0.5-50mm, about 5-25mm is especially desirable, and especially the depth is about 1-5mm 0.1-10mm. As an interval between crevices, it is made the distance from the edge of a crevice to the edge of other crevices, and is 10-120mm more preferably 5-160mm. moreover -- as a slot or the size of \*\*\*\* -- usually -- width-of-face: 0.1-5mm -- especially -- 1-3mm and depth: 0.1-5 -- especially -- 1-3mm and path: -- it is about 0.5-2mm especially 0.1-3mm

[0049] It is possible to use well-known various heating meanses as a heating means for heating and evaporating a raw material solution. For example, heating meanses, such as a heating means to heat at heaters, such as a tantalum line heater and a sheath heater, and a halogen lamp, other incandescence spheres, etc. are mentioned that what is necessary is just to have predetermined heat capacity, reactivity, etc. The heating temperature by the heating means is desirable, and although the precision of about 200-500 degrees C and a temperature control changes with material to evaporate, its about \*\*5 degrees C or less are desirable at 400 degrees C, for example.

[0050] The heat speed of response of an evaporating dish has a quick desirable thing. For this reason, using the halogen lamp installed into the atmosphere, if an evaporating dish is heated over quartz glass, a comparatively quick heat speed of response will be obtained. Moreover, an evaporating dish may be formed by material with a comparatively quick heat speed of response, such as Above PBN, and direct adhesion formation of the thin film heaters, such as PG (PAIRO rye tech graphite), may be carried out.

[0051] What is necessary is just to use a shadow mask, in order to form a specific field. Contiguity arrangement of the shadow mask is usually carried out on a substrate. Moreover, in order to secure adhesion with a substrate, a shadow mask is formed by the magnetic material and you may make it make it stick on a substrate by the magnetic field generating means which has arranged



this to the rear-face side of a substrate. Moreover, when distinguishing by different color with and carrying out each organic material dealing with a color of RGB and the relative-position precision of a shadow mask and a substrate is required, you may establish the alignment mechanism in which the relative position between a substrate and a shadow mask is adjusted.

[0052] What is necessary is just to adjust alignment by arranging a substrate on an X-Y table and specifically, operating this X-Y table. The control unit which carried processors, such as a microcomputer, can perform these control easily. As a precision of an alignment adjustment mechanism, it is  $\pm 10$  micrometers. It is desirable that it is the following. In addition, the X-Y table is usually constituted by the movable base material which has flexibility in X-Y shaft orientations, the stepping motor which drives tables (linear bearing etc.) in the direction of each X-Y, the servo motor, etc.

[0053] When performing a coating division, two or more sources of feeding, amount-of-supply adjustment meanses, and raw material evaporation meanses may be prepared among the above-mentioned components, and a respectively different organic material may be made to form. In this case, you may prepare at least one membrane formation room for every organic material.

[0054] The equipment of this invention may have the pressure regulation means for keeping the optimal the pressure of the membrane formation interior of a room. Although it is not limited especially if the pressure of the membrane formation interior of a room can be held the optimal, since this pressure regulation means is held at a predetermined degree of vacuum, as for the membrane formation interior of a room, it is usually good [ a means ] to constitute from the exhaust or a vacuum pump, and a gas supply means to supply a predetermined controlled atmosphere so that it may become fixed about the atmosphere and the pressure of the membrane formation interior of a room.

[0055] In this case, as a degree of vacuum of the membrane formation interior of a room, it is desirable to set up more highly than the pressure at the time of evaporation of a solvent and an organic material the equipment internal pressure at the time of raw material solution supply. Specifically, 100Pa - atmospheric pressure, especially 100Pa - an atmospheric pressure grade are desirable. Although the atmosphere which removed moisture enough is sufficient as a controlled atmosphere supplied to the membrane formation interior of a room, it is N<sub>2</sub> preferably. It is inert gas, such as Ar, helium, Kr, and Xe, and is especially N<sub>2</sub>. It is desirable. What is necessary is just to supply by the flow rate of about 1-10 SLMs as serviceability of a controlled atmosphere, although based also on the size of a membrane formation room. Moreover, you may have a pressure automatic-control means to detect automatically the pressure of the membrane formation interior of a room by the supplied gas, and the flow rate of the gas supplied to a membrane formation room, and to control this. The instrument for control of a well-known quantity of gas flow and a pressure, equipment, etc. can constitute these.

[0056] After raw material solution supply, in order to evaporate a solvent, you may perform heating or reduced pressure. Moreover, you may perform both heating and reduced pressure. As for the conditions of heating and reduced pressure, it is desirable that a solvent evaporates and an organic material does not evaporate. Specifically, especially heating temperature has desirable about 50-100 degrees C 40-120 degrees C. The pressure of reduced pressure has the desirable range of 10<sup>-6</sup> - 10<sup>-3</sup> Pa, especially 10<sup>-5</sup> - a 10<sup>-2</sup> Pa grade.

[0057] It is not limited especially as a substrate, and although what is necessary is for a laminating to be just possible for an organic thin film, if the application to an organic EL element etc. is considered especially, when taking out the light which emitted light, the transparence or translucent material of glass, a quartz, a resin, etc., etc. is used. Moreover, you may control the luminescent color using the color conversion film which contains a color filter film and the fluorescence nature matter in a substrate, or a dielectric reflective film. Moreover, when not taking out the light which emitted light, even if a substrate is transparent, it may be opaque, and when opaque, it may use ceramics etc.

[0058] Although especially the size of a substrate is not limited, either, the maximum length, especially diagonal length have the especially preferably desirable range of 400-700mm 200-1000mm. Although the maximum length is satisfactory even if he is 200mm or less, he can get a uniform thickness distribution especially by the substrate 200mm or more, and is desirable. Moreover, if the size of a substrate exceeds 1000mm, membrane formation equipment will be enlarged and control will become difficult.

[0059] Next, based on drawing, this invention is explained more concretely.

[0060] Drawing 1 is the outline block diagram showing the basic composition of the membrane formation equipment of this invention. In drawing, the manufacturing installation of the organic thin film of this invention has the raw material cistern 2 as a feeding means, the mass-flow controller 3 as an amount-of-supply adjustment means, the evaporating dish 4 as a raw material evaporation means, and the substrate 5 by which an organic thin film is formed. Moreover, an evaporating dish 4 and a substrate 5 are intercepted from external atmosphere, and they are arranged in the membrane formation room 8 so that the membrane formation under a predetermined atmosphere (degree of vacuum) may be possible. The exhaust 9 is connected to the membrane formation room 8 through the duct 14, and the inside of the membrane formation room 8 can be maintained now at a predetermined degree of vacuum (reduced pressure atmosphere) at the time of membrane formation.

[0061] Moreover, the membrane formation room 8 is connected with the vacuum workroom 16 for conveying a substrate between the workrooms of a loader, an unloader, and other processes through a gate valve 15. This vacuum workroom 16 can convey a work, without exposing from the membrane formation room 8 to the bottom of the atmosphere.

[0062] If the membrane formation equipment of this invention is used as a part of manufacturing installation of an organic EL element as shown in drawing 2, it can obtain a desirable result especially. In drawing 2, the manufacturing installation of an organic EL element has the loader room 21 connected with the vacuum conveyance room 31 which has the robot arm 62, the 1st vacuum evaporation room 32, the 2nd vacuum evaporation room 33 and the 1st spatter room 34, the 2nd spatter room 35, and the unloader room 41.

[0063] Moreover, these loader room 21, the 1st vacuum evaporatio room 32, the 2nd vacuum evaporatio room 33 and the 1st spatter room 34, the 2nd spatter room 35, the unloader room 41, and the vacuum conveyance room 31 It connects through gate valves 21b, 32a, 33a, 34a, 35a, and 41b, respectively. The atmosphere in each workroom (a loader room, the 1st vacuum evaporatio room, the 2nd vacuum evaporatio room, the 1st spatter room, the 2nd spatter room, unloader room) and the atmosphere of a vacuum conveyance room can be intercepted now.

[0064] The loader room 21 is a workroom for positive electrodes, such as ITO, carrying in formation and the substrate by which patterning was carried out, and has the role of the buffer room of the vacuum workroom 62 and an external air atmosphere. The 1st vacuum evaporatio room 32 and the 2nd vacuum evaporatio room 33 are workrooms for forming the organic layer of an organic EL element etc., and it is good to have membrane formation equipment of this invention in at least one room of these workrooms. Moreover, the 1st spatter room 34 and the 2nd spatter room 35 are workrooms which form functional thin films, such as a cathode of an organic EL element, a protection electrode, and a wiring electrode. Furthermore, the unloader room 41 is a workroom for taking out organic EL structure by which various functional thin films were formed on the substrate, and delivering to the following process.

[0065] While the vacuum conveyance room 31 is held at a predetermined degree of vacuum, it has the robot arm 61 which has two or more arms a, b, and c. A substrate is carried in to each workroom (a loader room, the 1st vacuum evaporatio room, the 2nd vacuum evaporatio room, the 1st spatter room, the 2nd spatter room, unloader room), or it takes out, and has come to be able to perform delivery of the substrate between each workroom in the state where it was intercepted from external atmosphere. This robot arm 61 can operate to the upper and lower sides, right and left, and order with the flexibility according to the indirect number while rotating in the direction in which the base is shown by the arrow in drawing.

[0066] By using the manufacturing installation of the example of illustration, an organic EL element can be manufactured very efficiently. Moreover, although each workroom arranges a vacuum deposition room and two spatter rooms in the example of illustration, respectively, the element composition of the organic EL element to manufacture can adjust the number of membrane formation rooms, and a kind suitably. Moreover, the workroom of a last process and a back process is connected with the loader room 21 and the unloader room 41, respectively.

[0067] if the membrane formation equipment of drawing 1 is further explained to a detail -- the raw material cistern 2 -- a gas passageway 11 -- minding -- N<sub>2</sub> etc. -- specified quantity supply of the gas for conveyance is carried out Especially as long as conveyance of the gas of a complement is possible for this gas passageway 11, it may not be limited, and it may be the thing of the shape of the shape of a pipe, the shape of a hose, and a duct. The quality of the material can also use the quality of the material conventionally used for liquid (organic solvent) conveyance, and can use metallic materials, such as stainless steel, copper, and aluminum, etc. preferably.

[0068] The raw material solution 1 is stored by the raw material cistern 2 interior, and if the gas for conveyance is introduced from a gas passageway 11, it will be conveyed by the mass-flow controller 3 through the raw material passage 12 with the pressure. This mass-flow controller is equipped with a mass flowmeter. This mass flowmeter has basic composition as shown in drawing 5.

[0069] drawing 5 -- some mass-flow controllers 3 -- it is a cross-section schematic diagram In drawing, it is in the interior of a mass-flow controller, and has the mainstream way 301 connected with the raw material passage 12 and 13, and the subpassage 302. Supposing the raw material solution has flowed from the direction of an arrow now, the raw material solution style which flows to the subpassage 304 besides the raw material solution style which flows in the mainstream way 301 will be produced. Two coils L1 and L2 are wound around the subpassage 304, and it connects with the ends of the resistance R1 and R2 of the bridge circuit constituted by resistance R1, R2, R3, and R4, respectively. On condition that predetermined (an initial state, steady state, etc.), this bridge circuit is set up by variable resistance R3 so that it may be balancing. Coils L1 and L2 are heated with predetermined calorific value by the current source which is not illustrated.

[0070] Here, if a raw material solution flows in the subpassage 304 when a bridge circuit is equilibrium, a difference will arise to temperature among coils L1 and L2. It becomes the difference of the resistance of coils L1 and L2, and appears, the balance of a bridge circuit collapses, and this temperature gradient is Amplifier Amp. The potential difference arises between input terminals. This potential difference is Amplifier Amp about the flow rate of the whole since it is proportional to the flow rate of the raw material solution which flows the subpassage 304 and a raw material solution flows by flow rate predetermined in the subpassage 304 and the mainstream way 301, and its change. It can grasp by the potential difference given between input terminals. And this flow rate information is Amplifier Amp. It is amplified and the control unit 305 of the movable valve 302 is given. A control unit 305 is Amplifier Amp. The movable shaft 303 is controlled by the given flow rate information, the opening of the movable valve 302 is adjusted, and it controls so that the raw material solution which flows the inside of the mainstream way 301 serves as a predetermined flow rate. Thus, the mass-flow controller 3 has come to be able to perform exact control of flow. In addition, although the above-mentioned example explained on the basis of the time of a bridge circuit being equilibrium, it is good on the basis of the state of it necessarily not being restricted to this and having the predetermined potential difference.

[0071] The raw material solution adjusted to the exact flow rate by the mass-flow controller 3 minds the raw material passage 13, is conveyed and introduced into an evaporating dish 4, and is evaporated.

[0072] The more concrete example of composition of an evaporating dish 4 is shown in drawing 3 and 4. in addition, drawing 4 -- A-A' of drawing 3 -- it is a cross-section view in part The evaporating dish 4 of the example of illustration has crevice 4a formed in a main part 4 and this main part 4, and slot 4b which has connected this crevice 4a, respectively. While the raw material solution supplied on the evaporating dish 4 is uniformly supplied to each crevice 4a by slot 4b, since the direction of



crevice 4a is deep, the raw material solution currently finally stored in crevice 4a comes to evaporate from slot 4b, so that drawing 4 may show.

[0073] In drawing 1, the substrate 5 is arranged on the evaporating dish 4. The range of the distance of a substrate 5 and an evaporating dish 4 is 10-160mm preferably from the best end face or evaporation datum level of the raw material solution supplied to the evaporating dish 4. Here, evaporation datum level means the datum level approximated as an evaporation side of the supplied raw material solution.

[0074] The organic material of the vaporized raw material will be formed on a substrate 5.

[0075] It connects with the heating control unit 7, and heating control of the heating means of an evaporating dish 4 is carried out by the power (current) given from this heating control unit 7. The heating control unit 7 has the temperature detection means 6 arranged at the evaporating dish 4, and controls the power (current) given to a heating means according to the temperature information on the evaporating dish 4 given from this temperature detection means 6.

[0076] The control algorithm on a microprocessor (MPU) general-purpose as a control section and the storages (ROM, RAM, etc.) connected with this MPU etc. can constitute the heating control unit 7. moreover, the mode of processors, such as CISC, RISC, and DSP, -- not asking -- usable -- in addition, ASIC -- or the combination of the logical circuit by general IC etc. and the analog operating circuit using the operational amplifier etc. can also constitute And what is necessary is just to control the power (current) control section equipped with semiconductor devices, such as a bipolar transistor, MOS-FET, a triac, and UJT, SCR, by the control signal from this control section.

[0077] Although the method of a temperature control is not limited especially if a temperature control can be performed appropriately, it is good to, use hardware (the analog, digital circuit) or a control algorithm which developed this adapting the PID (proportional integral derivative) control system etc. for example.

[0078] Thermocouples, such as a platinum-platinum rhodium alloy and a tungsten-tungsten rhenium, etc. are mentioned that the temperature detection means 6 should just be what can detect the temperature of a raw material evaporation means proper.

[0079] Usually let atmosphere at the time of membrane formation of the membrane formation interior of a room be a vacua. The pressure at the time of membrane formation is  $1 \times 10^{-6}$  to  $1 \times 10^{-3}$  Pa preferably, heating temperature is high and its about 250-450 degrees C are usually especially more desirable than the evaporation temperature of an organic material 200-500 degrees C.

[0080] In addition, the source of feeding is constituted among the above-mentioned components by the gas for conveyance mainly supplied from the raw material cistern 2 and the conveyance way 11, an amount-of-supply adjustment means is mainly constituted by the mass-flow controller 3, and a raw material evaporation means is mainly constituted by the evaporating dish 4. Moreover, the heating means of a raw material evaporation means is constituted by electric heat spheres, such as a heater mainly arranged at the evaporating dish 4, or a halogen lamp, and the temperature detection means 6 and the heating control unit 7.

[0081]

[Example] The membrane formation equipment of composition of having been shown in drawing 1 - drawing 3 was created, and the organic thin film for luminous layers of an organic EL element was formed.

[0082] The corresponding substrate was made into 200mm angle size, and the size of an evaporating dish was used as 300mm angle. The distance between an evaporating dish and a substrate was set as 100mm. The quality of the material of an evaporating dish was made into aluminum, is the arrangement shown in drawing 3, and formed the crevice with the cross-section configuration of drawing 4. Each crevice was connected in the slot with a width of face [ of 2mm ], and a depth of 2mm. In the quartz-glass pipe introduced into the interior of a vacuum tub with O-ring seal, the halogen lamp has been arranged and the heating mechanism in which an evaporating dish was heated through a quartz-glass pipe from an atmosphere side was established. Effective luminescence wavelength of a halogen lamp was set to 350nm.

[0083] The thermocouple has been arranged in the evaporating dish inferior surface of tongue, the thermometry was performed, and PID control of a halogen lamp output was performed using the heat regulator. Three amount-of-supply adjustment meanses of the raw material solution by the mass-flow control method were established.

[0084] As shown in drawing 2, such vacuum evaporatio room 2 rooms 32 and 33, and the spatter room 2 rooms 34 and 35, the loader room 21 and the unloader room 41 were connected through the vacuum conveyance room 31. The vacuum gate valve was prepared between each locus and the vacuum conveyance room. Each locus have arranged the evacuation system which became independent, respectively. The maintenance mechanism and substrate alignment mechanism of a shadow mask were prepared in the vacuum evaporatio rooms 32 and 33 and the SUPAKKU rooms 34 and 35. The many joint type robot 61 for substrate conveyance was formed in the vacuum conveyance room 31.

[0085] The ITO electrode layer etc. was used as the predetermined pattern membrane formation and pattern formation on the substrate, using the alkali free glass of 200mm angle as a substrate. The pattern formed on the substrate was a pattern corresponding to the full color matrix of  $64 \times 128$  dots, the size of each pixel was used as 300mm angle, and the size of each sub-picture element considered RGB each color as line-like arrangement as  $90 \times 300$ mm.

[0086] It is a substrate front face UV/O3 After processing, it supplied to the loader room 21 of membrane formation equipment. At this time, the vacuum conveyance room 31, the vacuum evaporatio rooms 32 and 33, and the SUPAKKU rooms 34 and 35 were exhausted to  $1 \times 10^{-4}$  or less Pa, respectively. The loader room 21 was exhausted to 10Pa or less, gate-valve 21a between the vacuum conveyance room 31 and the loader room 21 was opened, and the substrate was conveyed in the vacuum conveyance room 31. Subsequently, after closing gate-valve 21a between the vacuum conveyance room 31 and the loader room 21, gate pulp 32a between the vacuum conveyance room 31 and the 1st vacuum evaporatio room 32 was opened, and the substrate was

conveyed in the 1st vacuum evaporation room 32.

[0087] The shadow mask of magnetic material with which opening equivalent to the size of each pixel was formed in the 1st vacuum evaporation room 32 has been arranged. after carrying out alignment of a substrate and the shadow mask -- as a magnetic field generating means -- electromagnetism -- the substrate and the shadow mask were stuck with the magnet

[0088] 4, 4', the 4"-tris (-N-(3-methylphenyl)-N-phenylamino) triphenylamine which were melted to the tetrahydrofuran (THF : boiling point = 80 degrees C) at the concentration of 1.0g / ml N and N' which were melted to the concentration of 1.0mg / ml at (the following, m-MTDATA), and THF - diphenyl-N and N' -- the -m-tolyl -4 and 4' -- the -diamino -1 and 1' - biphenyl The tris (8-kino RINORATO) aluminum (Alq3 : evaporation temperature = 300 degrees C) melted to the concentration of 0.5mg / ml was prepared for (the following, TPD), and THF, and it supplied 500ml at a time to the source of supply of the mass-flow systems 1, 2, and 3, respectively.

[0089] It is N2 in the 1st vacuum evaporation room 32. After introducing and raising a pressure to 100000Pa, 12ml of m-MTDATA solutions was equally supplied to each crevice of an evaporating dish from the mass-flow system (1). The vacuum evaporation room was re-exhausted, the vacuum evaporation pan was heated at 300 degrees C, and m-MTDATA was deposited to the substrate in the place used as  $1 \times 10^{-4}$  or less Pa.

[0090] Subsequently, after having supplied 4.8ml of TPD solutions, heating the evaporating dish at 300 degrees C and \*\*\*\*(ing) TPD by the mass-flow system (2) similarly, the substrate was conveyed in the 2nd vacuum evaporation room. The shadow mask of magnetic material with which opening corresponding to one sub-picture element per each pixel was formed in the 2nd vacuum evaporation room has been arranged.

[0091] Alq3 which doped the dicyano methyl pyran (following, DCM:evaporation temperature = 290 degree C) 1% of the weight as a raw material for red luminous layers It melted to the concentration of 0.5 mg/ml at THF, and 500ml was supplied to the supply source of supply of the mass-flow system 1.

[0092] Alq3 which doped the coumarin 6 1% of the weight as a raw material for green luminous layers THF -- a 0.5mg [ /ml ] wave -- it melted to the degree and 500ml was supplied to the source of supply of the mass-flow system 2

[0093] DPA was melted in concentration of 1.0mg/ml as a raw material for blue luminous layers at THF, and the 500ml injection was carried out at the source of supply of the mass-flow system 3.

[0094] First, alignment of a substrate and the shadow mask was carried out, and they were stuck to the substrate so that the sub-picture element position on the substrate equivalent to a red luminous layer and opening of a shadow mask might face. Like the case of the 1st vacuum evaporation room, from the mass-flow system (1), 24ml of Alq3+DCM solutions was supplied, and the evaporating dish was heated and deposited at 300 degrees C.

[0095] Subsequently, alignment of a substrate and the shadow mask was carried out, and they were stuck to the substrate so that the sub-picture element position on the substrate equivalent to a green luminous layer and opening of a shadow mask might face.

[0096] Similarly, from the mass-flow system (2), 24ml of Alq3+ coumarin 6 solutions was supplied, and the evaporating dish was heated and deposited at 300 degrees C.

[0097] Furthermore, alignment of a substrate and the shadow mask was carried out, and they were stuck to the substrate so that the sub-picture element position on the substrate equivalent to a blue luminous layer and opening of a shadow mask might face.

[0098] Similarly, from the mass-flow system (3), 12ml of DPA solutions was supplied, and after heating and depositing an evaporating dish at 300 degrees C, the substrate was conveyed in the 1st vacuum evaporation room 32.

[0099] Alignment same at the 1st vacuum evaporation room 32 is performed, and it is Alq3 from a mass-flow system (3). 4.8ml of solutions was supplied, and the evaporating dish was heated and \*\*\*\*(ed) at 300 degrees C.

[0100] Subsequently, the substrate was conveyed in the 1st spatter room, aluminum-Li (Li:7at%), the substrate was further conveyed in the 2nd spatter room, and the spatter of the aluminum was carried out to the thickness of 200nm. [ in thickness of 5nm ] Under the present circumstances, at the spatter room, the shadow mask with opening equivalent to the portion which a top metal-electrode pattern forms has been arranged, and alignment and adhesion were performed like the case of a vacuum evaporation room.

[0101] It is the obtained organic EL display 10 mA/cm<sup>2</sup> When the time-sharing drive was carried out with current density, the pixel of all RGB emitted light normally and it has checked operating. Moreover, while the same thickness distribution as the case where it deposits using a Knudsen cell, rotating a substrate in about 400mm of distance between substrate-evaporation sources was obtained, the amount of the material used was pressed down by about 1/5.

[0102] In addition, in the above-mentioned example, although the halogen lamp was used as a heating means, when heating at the heater which carried out adhesion formation was used for an evaporating dish, the same result was obtained.

[0103]

[Effect of the Invention] As mentioned above, according to this invention, it corresponds to the substrate of a comparatively big area, can work easily by it being possible to set up the distance between evaporation-source-substrates short, supply of the material corresponding to one membrane formation being possible, and an organic thin film being able to distinguish by different color with, and can respond also to mixture or the doped organic material, and the manufacturing installation and the manufacture method of an organic thin film which can moreover comparatively respond also to the vacuum evaporation of low temperature can be realized.

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

**Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1] The manufacturing installation of the organic thin film characterized by providing the following. The source of feeding which supplies the raw material solution which the organic material is dissolving into a solvent. An amount-of-supply adjustment means to adjust and supply the raw material solution from this source of feeding to a constant rate. An evaporation means to evaporate the supplied raw material solution. It is a heating means to have the substrate by which the vaporized raw material is formed by depositing, and to heat the raw material solution stored by the evaporating dish which carries out the specified quantity reservoir of the raw material solution with which the aforementioned evaporation means was supplied, and this evaporating dish to temperature higher than the evaporation temperature of the organic material.

[Claim 2] The manufacturing installation of the organic thin film of the claim 1 whose distance from the best end face of the raw material solution currently stored by the aforementioned evaporation means to a membrane formation side is 10-160mm.

[Claim 3] The aforementioned evaporating dish is the manufacturing installation of the organic thin film of the claims 1 or 2 in which two or more crevices for storing raw material liquid are formed.

[Claim 4] The crevice of the aforementioned evaporating dish is the manufacturing installation of the organic thin film of the claim 3 connected by the raw material liquid route, respectively.

[Claim 5] The heating temperature by the aforementioned heating means is the manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-4 which are 200-500 degrees C.

[Claim 6] The aforementioned heating means is the manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-5 which are halogen lamps.

[Claim 7] The aforementioned heating means is the manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-5 which are the resistance heating heaters by which adhesion formation was carried out at least at the bottom of an evaporating dish.

[Claim 8] The aforementioned amount-of-supply adjustment means is the manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-7 which perform control of flow of a raw material solution with a mass-flow control method, control the supply time of this raw material solution, and adjust the amount of supply.

[Claim 9] The aforementioned amount-of-supply adjustment means is the manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-7 which adjust the amount of supply with a dispenser method.

[Claim 10] The manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-9 which have a pressure regulation means for setting up more highly than the pressure at the time of evaporation of a solvent and an organic material the equipment internal pressure at the time of the aforementioned raw material solution supply.

[Claim 11] The aforementioned pressure regulation means is the manufacturing installation of the organic thin film of the claim 10 which performs pressure regulation by supplying inert gas in equipment.

[Claim 12] The aforementioned organic material is the manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-11 which are two or more sorts of organic intermixing-of-material objects.

[Claim 13] The manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-5 which form an organic EL-element composition thin film.

[Claim 14] The manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-13 which have the alignment adjustment mechanism of the aforementioned substrate. [Claim 15] The aforementioned alignment adjustment mechanism is the manufacturing installation of the organic thin film of the claim 14 which adjusts a relative position with the shadow mask by which proximity arrangement was carried out to a substrate and this substrate.

[Claim 16] The aforementioned substrate is the manufacturing installation of one organic thin film of the claims 1-15 whose maximum length is 200-1000mm.

[Claim 17] The manufacture method of the organic thin film which forms membranes using one manufacturing installation of the claims 1-16.

---

[Translation done.]

**WEST**

Number of documents to display is limited to 10 for FULL format

Generate Collection

Print

Search Results - Record(s) 1 through 1 of 1 returned.

## 1. Document ID: JP 2001059161 A

L1: Entry 1 of 1

File: DWPI

Mar 6, 2001

DERWENT-ACC-NO: 2001-347699

DERWENT-WEEK: 200137

COPYRIGHT 2003 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Organic thin film formation apparatus has vaporizer including heater to heat dish storing organic solution to temperature higher than vaporization temperature of organic material

PATENT-ASSIGNEE:

ASSIGNEE

CODE

TDK CORP

DENK

PRIORITY-DATA: 1999JP-0233463 (August 20, 1999)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO

PUB-DATE

LANGUAGE

PAGES

MAIN-IPC

JP 2001059161 A

March 6, 2001

012

C23C014/24

APPLICATION-DATA:

PUB-NO

APPL-DATE

APPL-NO

DESCRIPTOR

JP2001059161A

August 20, 1999

1999JP-0233463

INT-CL (IPC): C23 C 14/24; H05 B 33/10; H05 B 33/14

ABSTRACTED-PUB-NO: JP2001059161A

BASIC-ABSTRACT:

NOVELTY - Vaporizer includes heater to heat the evaporating dish (4) storing the supplied raw material solution formed by dissolving organic material in solvent. The dish is heated to a temperature higher than the vaporization range of the organic material.

DETAILED DESCRIPTION - An INDEPENDENT CLAIM is also included for formation method of organic thin film.

USE - Organic thin film formation apparatus.

ADVANTAGE - Facilitates formation of thin film by simple operation at low temperature, as the vaporizer includes heater to heat dish temperature higher than vaporization temperature or organic material.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows the schematic block diagram of the organic thin film formation apparatus. (Drawing includes non-English language text).

Evaporating dish 4

CHOSEN-DRAWING: Dwg.1/5

TITLE-TERMS: ORGANIC THIN FILM FORMATION APPARATUS HEATER HEAT DISH STORAGE ORGANIC  
SOLUTION TEMPERATURE HIGH TEMPERATURE ORGANIC MATERIAL

DERWENT-CLASS: L03 M13 U11 U14 X26

CPI-CODES: L03-H04A; M13-F;

EPI-CODES: U11-C01J2; U11-C05A; U11-C09X; U14-H01F; X26-J;

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C2001-107685

Non-CPI Secondary Accession Numbers: N2001-251773

Full	Title	CIT.1	REV.1	CLS.1	REF.1	SEQ.1	ATT.1

Generate Collection

Print

Terms

Documents

1999jp-0233463.prai.

1

Display Format: **FULL**

Change Format

[Previous Page](#)

[Next Page](#)



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2001-59161  
(P2001-59161A)

(43) 公開日 平成13年3月6日 (2001.3.6)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

ターミナル\* (参考)

C 2 3 C 14/24

C 2 3 C 14/24

N 3 K 0 0 7

H 0 5 B 33/10

H 0 5 B 33/10

4 K 0 2 9

33/14

33/14

A

審査請求 未請求 請求項の数17 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願平11-233463

(22) 出願日 平成11年8月20日 (1999.8.20)

(71) 出願人 000003067

ティーディーケー株式会社  
東京都中央区日本橋1丁目13番1号

(72) 発明者 田辺 宏

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式会社内

(72) 発明者 山本 洋

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式会社内

(74) 代理人 100082865

弁理士 石井 陽一

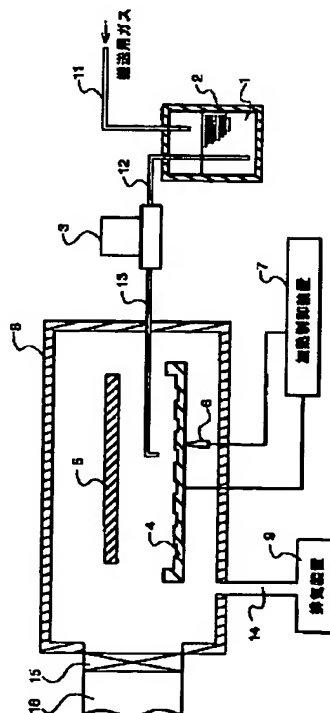
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機薄膜の製造装置および製造方法

(57) 【要約】

【課題】 比較的大きな面積の基板に対応し、蒸発源-基板間の距離を短く設定することが可能であり、1回の成膜分に対応する材料を供給可能であって、有機薄膜の塗り分け作業が簡単に行え、混合物やドーピングされた有機材料にも対応でき、しかも比較的低い温度の蒸着にも対応可能な有機薄膜の製造装置および製造方法を実現する。

【解決手段】 有機材料が溶媒中に溶解している原料溶液を供給する原料供給源と、この原料供給源からの原料溶液を一定量に調整して供給する供給量調整手段と、供給された原料溶液を気化する気化手段と、気化した原料が堆積して成膜される基板とを有し、前記気化手段は、供給された原料溶液を所定量貯留する蒸発皿と、この蒸発皿に貯留された原料溶液をその有機材料の気化温度よりも高い温度に加熱する加熱手段を有する有機薄膜の製造装置とした。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 有機材料が溶媒中に溶解している原料溶液を供給する原料供給源と、

この原料供給源からの原料溶液を一定量に調整して供給する供給量調整手段と、

供給された原料溶液を気化する気化手段と、

気化した原料が堆積して成膜される基板とを有し、

前記気化手段は、供給された原料溶液を所定量貯留する蒸発皿と、この蒸発皿に貯留された原料溶液をその有機材料の気化温度よりも高い温度に加熱する加熱手段を有する有機薄膜の製造装置。

【請求項2】 前記気化手段に貯留されている原料溶液の最上端面から成膜面までの距離が、

10～160mmである請求項1の有機薄膜の製造装置。

【請求項3】 前記蒸発皿は、原料液を貯留するための複数の凹部が形成されている請求項1または2の有機薄膜の製造装置。

【請求項4】 前記蒸発皿の凹部は、それぞれ原料液路により連結されている請求項3の有機薄膜の製造装置。

【請求項5】 前記加熱手段による加熱温度は、200～500℃である請求項1～4のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項6】 前記加熱手段はハロゲンランプである請求項1～5のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項7】 前記加熱手段は、少なくとも蒸発皿の底部に密着形成された抵抗加熱ヒーターである請求項1～5のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項8】 前記供給量調整手段は、マスフローコントロール方式により原料溶液の流量制御を行い、この原料溶液の供給時間を制御して供給量を調整する請求項1～7のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項9】 前記供給量調整手段は、ディスペンサー方式により供給量を調整する請求項1～7のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項10】 前記原料溶液供給時の装置内圧力を、溶媒および有機材料の蒸発時の圧力よりも高く設定するための圧力調整手段を有する請求項1～9のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項11】 前記圧力調整手段は、不活性ガスを装置内に供給することで圧力調整を行う請求項10の有機薄膜の製造装置。

【請求項12】 前記有機材料は、2種以上の有機物質の混合物である請求項1～11のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項13】 有機EL素子構成薄膜の成膜を行う請求項1～5のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項14】 前記基板のアライメント調整機構を有する請求項1～13のいずれかの有機薄膜の製造装置

【請求項15】 前記アライメント調整機構は、基板と、この基板に近接配置されたシャドーマスクとの相対

位置を調整する請求項14の有機薄膜の製造装置。

【請求項16】 前記基板は、最大長が200～1000mmである請求項1～15のいずれかの有機薄膜の製造装置。

【請求項17】 請求項1～16のいずれかの製造装置を用いて成膜を行う有機薄膜の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は有機EL素子の構成薄膜等の有機薄膜の製造装置、および製造方法に関し、詳しくは、加熱により有機材料物質を蒸発させ、これを基板上の成膜領域に堆積させることで薄膜を形成する蒸着法を用いた有機薄膜の製造装置、および製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】薄膜形成を行う基本技術の1つとして、真空蒸着法が知られている。この真空蒸着法は、真空槽内で蒸発源と成膜用基板を適当に組み合わせて、薄膜を形成するものである。蒸発源を作る手段も様々考えられており、例えば、Applied Physics Letter, Vol.68, No.16, 15 April 1996 P2276～2278に記載されているような、比較的電気抵抗の高い金属容器（金属ボート）に電流を流し、その発熱により原料を蒸発させるいわゆる抵抗加熱蒸着法が知られている。また、原料に直接電子ビームやレーザービームを照射し、そのエネルギーで原料を蒸発させるいわゆる電子ビーム・レーザービーム蒸着法等も知られている。中でも抵抗加熱を用いた成膜方法（抵抗加熱蒸着法）は、製造装置の構成が簡便であり、低価格で良質の薄膜形成を実現できることから広く普及している。

【0003】抵抗加熱蒸着法は、融点の高いタングステン、タンタル、モリブデン等の金属材料を薄板状に加工して、電気抵抗を高くした金属板から原料容器（金属ボート）を作製し、その両端から直流電流を流し、その発熱を用いて原料を蒸発させ、蒸発ガスを供給している。発散したガスの一部が基板上に堆積し、薄膜が形成される。

【0004】ところで、これらの蒸着法で用いる蒸発源は、点蒸発源として近似できる。特開平10-335062号公報では、大面積の基板に均一な膜厚の薄膜を形成させるために、蒸発源-基板間の距離を大きくし、基板を回転させ、蒸発源を基板回転中心からオフセット配置させる手法について検討されている。しかしながら、この手法では蒸発源-基板間の距離が離れているため高価な有機材料を効率的に使用することが困難である。また、複数の蒸発源を用いた擬似的な面蒸発源は、各蒸発源からの材料の蒸発速度を一定に保つための膜厚コンローラーを配置する必要があり、実現が困難であった。

【0005】また、一つの基板上に数種類の有機薄膜を別個の領域毎に成膜したり、特定の領域にのみ成膜する

ような場合には、シャドーマスクを用いる等の方法が一般的であるが、蒸発源-基板間の距離が離れているため、蒸発源がオフセット配置されている場合には、シャドーマスクの厚さが影を作り、微細なパターンに塗り分けることが困難であった。また、オフセット配置や基板の回転を行わずにマスク蒸着を行おうとすると、更に蒸発源-基板間の距離を大きくとる必要が生じ、有機材料の使用効率が更に低下してしまう。

【0006】近年、有機EL素子が盛んに研究されている。これは、ホール注入電極上にトリフェニルジアミン(TPD)などのホール輸送材料を蒸着により薄膜とし、さらにアルミキノリノール錯体(Alq3)などの蛍光物質を発光層として積層し、さらにMgなどの仕事関数の小さな金属電極(電子注入電極)を形成した基本構成を有する素子で、10V前後の電圧で数100から数10000cd/m<sup>2</sup>ときわめて高い輝度が得られることで注目されている。

【0007】従来より、有機EL素子を応用した製品を製造するに際し、上記のような蒸着法を用いて有機材料による機能性薄膜を形成している。このような量産工程においては、生産性が高く、しかも材料の使用効率をいかに高くするかが重要な課題である。しかし、従来の蒸着装置を用いた製造装置は、材料の使用効率が悪く、高価な有機材料を無駄に消費したり、RGBのフルカラーディスプレイを得ようとした場合の塗り分け作業が複雑であり、塗り分け精度を高くすることが困難であった。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】この発明の目的は、比較的大きな面積の基板に対応し、蒸発源-基板間の距離を短く設定することが可能であり、1回の成膜分に対応する材料を供給可能であって、有機薄膜の塗り分け作業が簡単に行え、混合物やドーピングされた有機材料にも対応でき、しかも比較的低い温度の蒸着にも対応可能な有機薄膜の製造装置および製造方法を実現することである。

【0009】

【課題を解決するための手段】上記の目的は、以下の(1)～(9)の構成により実現される。

(1) 有機材料が溶媒中に溶解している原料溶液を供給する原料供給源と、この原料供給源からの原料溶液を一定量に調整して供給する供給量調整手段と、供給された原料溶液を気化する気化手段と、気化した原料が堆積して成膜される基板とを有し、前記気化手段は、供給された原料溶液を所定量貯留する蒸発皿と、この蒸発皿に貯留された原料溶液をその有機材料の気化温度よりも高い温度に加熱する加熱手段を有する有機薄膜の製造装置。

(2) 前記気化手段に貯留されている原料溶液の最上端面から成膜面までの距離が、10～160mmである上記(1)の有機薄膜の製造装置。

(3) 前記蒸発皿は、原料液を貯留するための複数の凹部が形成されている上記(1)または(2)の有機薄膜の製造装置。

(4) 前記蒸発皿の凹部は、それぞれ原料液路により連結されている上記(3)の有機薄膜の製造装置。

(5) 前記加熱手段による加熱温度は、200～500℃である上記(1)～(4)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(6) 前記加熱手段はハロゲンランプである上記

(1)～(5)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(7) 前記加熱手段は、少なくとも蒸発皿の底部に密着形成された抵抗加熱ヒーターである上記(1)～

(5)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(8) 前記供給量調整手段は、マスフローコントロール方式により原料溶液の流量制御を行い、この原料溶液の供給時間を制御して供給量を調整する上記(1)～(7)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(9) 前記供給量調整手段は、ディスペンサー方式により供給量を調整する上記(1)～(7)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(10) 前記原料溶液供給時の装置内圧力を、溶媒および有機材料の蒸発時の圧力よりも高く設定するための圧力調整手段を有する上記(1)～(9)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(11) 前記圧力調整手段は、不活性ガスを装置内に供給することで圧力調整を行う上記(10)の有機薄膜の製造装置。

(12) 前記有機材料は、2種以上の有機物質の混合物である上記(1)～(11)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(13) 有機EL素子構成薄膜の成膜を行う上記

(1)～(5)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(14) 前記基板のアライメント調整機構を有する上記(1)～(13)のいずれかの有機薄膜の製造装置

(15) 前記アライメント調整機構は、基板と、この基板に近接配置されたシャドーマスクとの相対位置を調整する上記(14)の有機薄膜の製造装置。

(16) 前記基板は、最大長が200～1000mmである上記(1)～(15)のいずれかの有機薄膜の製造装置。

(17) 上記(1)～(16)のいずれかの製造装置を用いて成膜を行う有機薄膜の製造方法。

【0010】

【発明の実施の形態】本発明の有機薄膜の製造装置は、有機材料が溶媒中に溶解している原料溶液を供給する原料供給源と、この原料供給源からの原料溶液を一定量に調整して供給する供給量調整手段と、供給された原料溶液を気化する気化手段と、気化した原料が堆積して成膜される基板とを有し、前記気化手段は、供給された原料溶液を所定量貯留する蒸発皿と、この蒸発皿に貯留され

た原料溶液をその有機材料の気化温度よりも高い温度に加熱する加熱手段を有するものである。

【0011】このように、成膜する有機材料を溶媒中に溶解させ、この原料溶液を所定量に調整して供給し、これを面蒸発源としての蒸発皿上に保持し、これを加熱して気化し、成膜することにより、膜厚分布を良好に保ったままで、蒸発源-基板間の距離を短くすることができ、材料の使用効率が向上する。また、膜組成や膜厚の調整を正確に行うことができるとともに、連続的な成膜が可能となる。

【0012】原料供給源は、有機溶媒中に溶解された原料溶液を保持し、これを必要に応じて供給する。このような原料供給源としては、所定量の原料溶液を貯蔵できる容器、タンク等であればよい。その形状や大きさは特に限定されるものではなく、必要に応じて適切な容量、形状とすればよい。また、その材質も特に限定されるものではないが、有機溶媒に溶解したり、腐食されることがなく、しかも、原料の有機材料と反応、結合するような物質でないことが必要である。

【0013】原料供給源に保有されている原料溶液は、有機溶媒に原料となる有機材料を溶解させたものである。有機材料を溶媒中に溶解させることにより、蒸発手段への原料の供給量を容易に適切にコントロールすることができ、直接蒸着膜の膜厚制御を行うことなく、供給された原料溶液を全て蒸発させるだけで簡単に所望の膜厚を得ることができる。

【0014】このとき、2種以上の有機材料を所望の濃度比で予め調整して溶媒中に溶解させておけば、直接蒸着速度の制御を行うことなく、原料溶液を単に蒸発させるだけで所望の混合比の有機混合薄膜を得ることができる。

【0015】原料となる有機材料としては、気相堆積法で成膜可能な物質であれば特に限定されるものではなく、種々の有機材料を用いることができる。例えば、ポリアセチレン、ポリイン等の鎖状高分子、またはポリアセン（アントラセン等）や金属キレート化合物（銅フタロシアニン等）の分子結晶等の $\pi$ 電子共役系有機半導体物質、アントラセン、ジエチルアミン類、*p*-フェニレンジアミン、テトラメチル-*p*-フェニレンジアミン（TMPD）、テトラチオフルバレン（TTF）等のドナーとなる化合物と、テトラシアノキノジメタン（TCNQ）、テトラシアノエチレン（TCNE）、*p*-クロルアニル等のアクセプタとなる化合物などから構成される電荷移動錯体、色素材料、蛍光材料、液晶材料等を挙げることができる。

【0016】これらの有機材料の気化温度としては、成膜時の気圧下で、通常150～500℃程度、特に200～400℃程度が好ましい。また、材料を2種以上用いる場合には、もっとも高い気化温度以上に加熱する必要がある。また、用いる材料の分解温度で加熱する必要

がある。溶媒中の有機材料の濃度としては、0.1～50wt%、特に5～20wt%程度が好ましい。

【0017】これらの有機材料の中でも、特に有機EL素子構成膜の有機材料を用いると良好な結果を得ることができる。有機EL素子の構成膜は、ホール注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等であるが、これらの構成薄膜、特に発光層は、正確な膜厚と組成の制御を必要とする。従って、本発明の装置を用いることにより正確な膜厚の制御と組成の制御が可能となり、有機EL素子の品質が向上し、安定するとともに、さらに性能の優れた新たな素子を提供することも可能となる。

【0018】有機EL素子の発光層に用いる有機物質としては、発光機能を有する化合物である蛍光性物質を挙げることができる。このような蛍光性物質としては、例えば、特開昭63-264692号公報に開示されているような化合物、例えばキナクリドン、ルブレン、スチリル系色素等の化合物から選択される少なくとも1種が挙げられる。また、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム等の8-キノリノールまたはその誘導体を配位子とする金属錯体色素などのキノリン誘導体、テトラフェニルブタジエン、アントラセン、ペリレン、コロネン、12-フタロペリノン誘導体等が挙げられる。さらに、特開平8-12600号公報（特願平6-110569号）に記載のフェニルアントラセン誘導体、特開平8-12969号公報（特願平6-114456号）のテトラアリールエテン誘導体等を用いることができる。

【0019】また、それ自体で発光が可能なホスト物質とドーパントとを組み合わせ使用することがある。これにより、ホスト物質の発光波長特性を変化させることができ、長波長に移行した発光が可能になるとともに、素子の発光効率や安定性が向上する。このような場合の発光層における化合物の含有量は、好ましくは0.01～20体積%、さらには0.1～15体積%である。

【0020】ホスト物質としては、キノリノラト錯体が好ましく、さらには8-キノリノールまたはその誘導体を配位子とするアルミニウム錯体が好ましい。このようなアルミニウム錯体としては、特開昭63-264692号、特開平3-255190号、特開平5-70733号、特開平5-258859号、特開平6-215874号等に開示されているものを挙げることができる。

【0021】具体的には、まず、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム、ビス（8-キノリノラト）マグネシウム、ビス（ベンゾ{f}-8-キノリノラト）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）アルミニウムオキシド、トリス（8-キノリノラト）インジウム、トリス（5-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム、8-キノリノラトリチウム、トリス（5-クロロ-8-キノリノラト）ガリウム、ビス（5-クロロ-8-キノリノラト）カルシウム、5,7-ジクロロ-8-キノリノラトアルミニウム、トリス（5,7-ジプロモ-

10

20

30

40

50

8-ヒドロキシキノリノラト) アルミニウム、ポリ〔亜鉛(II)-ビス(8-ヒドロキシ-5-キノリニル)メタン〕等がある。

【0022】このほかのホスト物質としては、特開平8-12600号公報(特願平6-110569号)に記載のフェニルアントラセン誘導体や特開平8-12969号公報(特願平6-114456号)に記載のテトラアリールエテン誘導体なども好ましい。

【0023】また、発光層は、必要に応じて、少なくとも1種のホール注入輸送性化合物と少なくとも1種の電子注入輸送性化合物との混合層とすることも好ましく、さらにはこの混合層中にドーパントを含有させることが好ましい。このような混合層における化合物の含有量は、0.01~20体積%、さらには0.1~15体積%とすることが好ましい。

【0024】混合層に用いられるホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物は、各々、後述のホール注入輸送性の化合物および電子注入輸送性の化合物の中から選択すればよい。なかでも、ホール注入輸送性の化合物としては、強い蛍光を持ったアミン誘導体、例えばホール輸送材料であるトリフェニルジアミン誘導体、さらにはスチリルアミン誘導体、芳香族縮合環を持つアミン誘導体を用いるのが好ましい。

【0025】電子注入輸送性の化合物としては、キノリン誘導体、さらには8-キノリノールないしその誘導体を配位子とする金属錯体、特にトリス(8-キノリノラト)アルミニウム(A1q3)を用いることが好ましい。また、上記のフェニルアントラセン誘導体、テトラアリールエテン誘導体を用いるのも好ましい。

【0026】この場合の混合比は、それぞれのキャリア移動度とキャリア濃度によるが、一般的には、ホール注入輸送性化合物の化合物/電子注入輸送機能を有する化合物の重量比が、1/99~99/1、さらに好ましくは10/90~90/10、特に好ましくは20/80~80/20程度となるようにすることが好ましい。

【0027】また、混合層の厚さは、分子層一層に相当する厚み以上で、有機化合物層の膜厚未満とすることが好ましい。具体的には1~85nmとすることが好ましく、さらには5~60nm、特に5~50nmとすることが好ましい。

【0028】ホール注入輸送層には、例えば、特開昭63-295695号公報、特開平2-191694号公報、特開平3-792号公報、特開平5-234681号公報、特開平5-239455号公報、特開平5-299174号公報、特開平7-126225号公報、特開平7-126226号公報、特開平8-100172号公報、EP0650955A1等に記載されている各種有機化合物を用いることができる。例えば、テトラアリールベンジジン化合物(トリアリールジアミンないしトリフェニルジアミン:TPD)、芳香族三級アミン、

ヒドラゾン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、アミノ基を有するオキサジアゾール誘導体、ポリチオフェン等である。これらの化合物は、1種のみを用いても、2種以上を併用してもよい。2種以上を併用するときは、別層にして積層したり、混合したりすればよい。

【0029】電子注入輸送層には、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(A1q3)等の8-キノリノールまたはその誘導体を配位子とする有機金属錯体などのキノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ペリレン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノノ誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体等を用いることができる。

【0030】有機材料を溶解させる溶媒としては、有機溶媒が好ましく、溶解させる有機材料の種類により、最適なものを用いればよい。なお、原料供給源の構成材料や、流路の構成材料等を溶解、腐食しない物質であることが必要である。その沸点としては、50~150℃、特に60~100℃程度が好ましい。具体的には、テトラヒドロフラン(THF)等が好ましい。

【0031】原料供給手段には、上記の原料溶液を保持するための容器等のほか、原料溶液を搬送する搬送手段を有する。この搬送手段は、液体を移動させるために用いられている公知の手段の中から適宜選択して使用することができる。具体的には、液体ポンプ等の機械的圧力を加えて搬送させたり、空気、あるいは不活性ガス等の気体により原料溶液に圧力を加えたり、これとともに搬送する方法などが挙げられる。これらのなかでも、気体の圧力を利用するものが正確な流量調整に向いている。搬送に用いられる気体としては、空気、Ar、Ne、Xe、Kr等の不活性ガス、N<sub>2</sub>等を挙げることができ、これらのなかではN<sub>2</sub>等が好ましい。

【0032】必要により使用されるポンプは、特に限定されるものではなく、流体を所定の圧力で送出可能なものであればよいが、有機溶媒に溶解したり、これにより変質したりしないものが好ましい。具体的には、遠心ポンプ、ベローズポンプ、ローラーポンプ等を用いることができる。

【0033】供給量調整手段は、供給される原料溶液の供給量を調整し、最適な供給量となるようにする。供給量調整手段は、それ自体で原料溶液を送出、搬送する機能を有するものでも、あらかじめ原料供給手段から供給されてきた原料溶液の流量を制限することにより調整するものでも、いずれのものでもよいが、正確な供給量の調整を行えるものであることが好ましい。

【0034】液体の供給量を制御することにより、蒸着膜厚を制御しているので、比較的簡単な構成で正確な膜厚制御が可能となり、しかも有機材料などの高価な原料の無駄を少なくすることができる。

【0035】具体的には、可変流量調整弁と、流量計を



用い、マスフローコントロールシステム等の制御方式により制御すればよい。流量計としては、質量流量計が好ましいが、差圧流量計、面積流量計、容積流量計、電磁流量計、タービン流量計、渦流量計等も必要により使用することができる。

【0036】また、開閉バルブと、ガス圧送圧力制御手段と、タイマー等の時間制御手段とを組み合わせたディスペンサーシステムにより供給量を調整してもよい。この場合、ニードル等によるコンダクタンス調整手段を流路中に設けてもよい。コンダクタンス制御手段は、搬送路中に設けたニードルバルブの内径を変更することにより制御してもよいし、ニードルバルブの開度を調整することにより、制御してもよい。

【0037】供給量調整手段により調整される原料溶液の流量としては、特に限定されるものではないが、通常、0.1~100ml/分、特に1.0~50ml/分程度が好ましい。制御可能な流量の精度としては、通常、±1%以下、±特に0.5%以下の範囲で調整できるものが好ましい。

【0038】原料気化手段は、供給された原料溶液を加熱し気化して、成膜面に供給する。すなわち、通常、原料気化手段は、供給された原料溶液を所定量貯留する蒸発皿と、この蒸発皿に貯留された原料溶液をその有機材料の気化温度よりも高い温度に加熱する加熱手段を有する。

【0039】蒸発皿は、供給された原料溶液を均一に保持、貯留する。原料皿の大きさとしては、成膜面をカバーしうる大きさであれば特に限定されるものではないが、通常、基板よりも大きいことが好ましい。

【0040】特に、基板の端部まで均一な膜厚を必要とする場合には、蒸発皿の大きさを基板の外形よりも大きくすることが有効である。この場合、基板の端部から蒸発皿の端部までの水平距離は、蒸発皿と基板間の距離によりその最適値が異なるが、通常20~200mm、特に40~160mmが好ましい。

【0041】蒸発皿に蓄えられる原料液の容量としては、好ましくは0.1~100cm<sup>3</sup>、より好ましくは1~50cm<sup>3</sup>程度である。蒸発皿の形状も、円筒状であっても、四角い箱状のものであってもよいが、通常、基板形状に沿った四角い箱状である。

【0042】蒸発皿を構成する材料としては、所定の温度に耐え、有機溶媒や有機材料と、反応したりしないものであれば特に限定されるものではない。具体的には、るつば用の材質として用いられているものが好ましく、例えば、パイロライティックボロンナイトライド(PBN)、アルミナ、シリコンカーバイド(SiC)等のセラミックス、石英等や、タングステン、タンタル、モリブデン等の高融点金属が挙げられる。また、有機溶媒や有機材料の気化温度が比較的低いため、ステンレス、アルミニウム等の金属材料も使用可能である。特に、熱応

答性の面から考えると、PBN、SiC、金属材料等が好ましく、さらにコスト面まで考慮すると金属材料が好ましい。

【0043】また、原料溶液が蒸発皿中で不均一になっていると、成膜される膜厚分布がばらつきやすくなる。このため、蒸発皿は水平に保たれている必要があり、その水平度は、通常、0.5mm以下、特に0.1mm以下であることが好ましい。水平度は、通常、蒸発皿の液溜め側の底面、あるいはこれに複数の凹部が形成されている場合にはこれらの底面を結ぶ平面により評価することができる。

【0044】必要に応じて水平度調整機構を設けてもよい。水平度調整機構は、水準器などの水平度検出手段と、マイクロメータヘッド、セットボルト等を応用した水平度調整手段を有する手動調整機構であってもよいし、プロセッサ等の制御手段を備え、これらの調整操作を自動的に行う自動機構であってもよい。

【0045】蒸発皿は、貯留される原料溶液の最上端面となる位置、ないし蒸発基準面から基板の成膜面までの距離が、10~160mm、特に20~120mmであることが好ましい。この範囲より距離が短いと膜厚分布が均一でなくなり、距離が長くなると材料の使用効率が悪化してくる。

【0046】蒸発皿の面積が大きい場合には、その底部に複数の凹部を形成してもよい。その場合、形成する凹部は一定間隔で配置するように形成するとよい。供給された原料溶液は各凹部に保持、貯留されるが、原料溶液の液面が凹部の上端部を超えて各凹部上の原料溶液同士が繋がって一体となるように原料溶液を供給するか、蒸発皿の構造をそのように決定してもよい。

【0047】各凹部に保持、貯留される原料溶液を均一にするために、各凹部を連結する原料液路を有してもよい。この原料液路は、例えば溝ないし管により構成することができる。この場合、溝の深さないし管の開口部の深さは凹部の深さよりも浅いことが好ましい。溝の幅ないし管の径または幅は、凹部の幅より狭いことが好ましい。

【0048】凹部の大きさとしては、蒸発皿全体の大きさにもよるが、通常、直径にして0.5~50mm、特に5~25mm程度が好ましく、その深さは、0.1~10mm、特に1~5mm程度である。凹部間の間隔としては、凹部の端部から他の凹部の端部までの距離にして、好ましくは5~160mm、より好ましくは10~120mmである。また、溝ないし管の大きさとしては、通常、幅:0.1~5mm、特に1~3mm、深さ:0.1~5、特に1~3mm、径:0.1~3mm、特に0.5~2mm程度である。

【0049】原料溶液を加熱し気化するための加熱手段としては、公知の種々の加熱手段を用いることが可能である。例えば、所定の熱容量、反応性等を備えたもので

10

20

30

40

50

あればよく、例えばタンタル線ヒータ、シースヒータ等のヒータにより加熱する加熱手段や、ハロゲンランプ、その他白熱球等の加熱手段等が挙げられる。加熱手段による加熱温度は、好ましくは200～500℃程度、温度制御の精度は、蒸発させる材料により異なるが、例えば400℃で±5℃以下程度が好ましい。

【0050】蒸発皿の熱応答速度は速いことが好ましい。このため、大気中に設置されたハロゲンランプを用いて、石英ガラス越しに蒸発皿を加熱すると比較的速い熱応答速度が得られる。また、蒸発皿を上記PBN等の比較的熱応答速度の速い材料により形成し、PG（パイロライテックグラファイト）等の薄膜ヒータを直接密着形成してもよい。

【0051】特定の領域を成膜するには、シャドーマスクを用いればよい。シャドーマスクは、通常基板上に近接配置される。また、基板との密着性を確保するためには、シャドーマスクを磁性材料により形成し、これを基板の裏面側に配置した磁界発生手段により、基板上に密着させるようにしてもよい。また、RGBの各色対応の有機材料を塗り分けする場合等、シャドーマスクと基板との相対位置精度が要求される場合には、基板とシャドーマスク間の相対位置を調整するアライメント機構を設けてもよい。

【0052】具体的には、基板をX-Yテーブル上に配置し、このX-Yテーブルを動作させることにより、アライメントを調整すればよい。これらの制御は、マイコン等のプロセッサを搭載した制御装置により容易に行うことができる。アライメント調整機構の精度としては、±10μm以下であることが好ましい。なお、X-Yテーブルは、通常、X-Y軸方向に自由度を有する可動支持体（リニアベアリング等）と、テーブルをX-Yそれぞれの方向に駆動するパルスモータ、サーボモータなどにより構成されている。

【0053】塗り分けを行う場合、上記構成要素のうち、原料供給源と、供給量調整手段と、原料気化手段とを複数用意し、それぞれ別の有機材料の成膜を行わせてもよい。この場合、成膜室は、1つでも、それぞれの有機材料毎に用意してもよい。

【0054】本発明の装置は、成膜室内の圧力を最適に保つための圧力調整手段を有していてもよい。この圧力調整手段は、成膜室内の圧力を最適に保持しうるものであれば特に限定されるものではないが、通常、成膜室内は所定の真空度に保持されることから排気装置ないし真空ポンプ等と、成膜室内の雰囲気と圧力を一定になるように所定の雰囲気ガスを供給するガス供給手段とから構成するとよい。

【0055】この場合、成膜室内の真空度としては、原料溶液供給時の装置内圧力を、溶媒および有機材料の蒸発時の圧力よりも高く設定されていることが好ましい。具体的には100Pa～大気圧、特に100Pa～大気圧程

度が好ましい。成膜室内に供給される雰囲気ガスとしては、水分を十分除去した大気でもよいが、好ましくはN<sub>2</sub>やAr、He、Kr、Xe等の不活性ガスであり、特にN<sub>2</sub>が好ましい。雰囲気ガスの供給能力としては、成膜室の大きさにもよるが、1～10SLM程度の流量で供給すればよい。また、供給されたガスによる成膜室内の圧力と、成膜室に供給するガスの流量とを自動的に検出してこれを制御する圧力自動制御手段を有していてもよい。これらは、公知のガス流量、圧力の制御のための器具、装置等により構成することができる。

【0056】原料溶液供給後、溶媒を蒸発させるために加熱または減圧を行ってもよい。また、加熱と減圧の両方を行ってもよい。加熱・減圧の条件は、溶媒が蒸発し、有機材料が気化しないことが好ましい。具体的には、加熱温度は40～120℃、特に50～100℃程度が好ましい。減圧の圧力は、10<sup>-6</sup>～10<sup>3</sup>Pa、特に10<sup>-5</sup>～10<sup>2</sup>Pa程度の範囲が好ましい。

【0057】基板としては特に限定されるものではなく、有機薄膜が積層可能なものであればよいが、特に有機EL素子等への応用を考えると、発光した光を取り出す場合、ガラスや石英、樹脂等の透明ないし半透明材料を用いる。また、基板に色フィルター膜や蛍光性物質を含む色変換膜、あるいは誘電体反射膜を用いて発光色をコントロールしてもよい。また、発光した光を取り出さない場合には、基板は透明でも不透明であってもよく、不透明である場合にはセラミックス等を使用してもよい。

【0058】基板の大きさも特に限定されるものではないが、好ましくは最大長、特に対角長が200～1000mm、特に400～700mmの範囲が好ましい。最大長は200mm以下であっても問題ないが、特に200mm以上の基板で均一な膜厚分布を得ることができ好ましい。また、基板の大きさが1000mmを超えると成膜装置が大型化し、制御が困難になってくる。

【0059】次に、図に基づいて本発明をより具体的に説明する。

【0060】図1は、本発明の成膜装置の基本構成を示す概略構成図である。図において、本発明の有機薄膜の製造装置は、原料供給手段としての原料貯液槽2と、供給量調整手段としてのマスフローコントローラ3と、原料気化手段としての蒸発皿4と、有機薄膜が成膜される基板5とを有する。また、蒸発皿4および基板5は外部雰囲気から遮断して、所定の雰囲気下（真空度）での成膜が可能のように、成膜室8内に配置されている。成膜室8には、ダクト14を介して排気装置9が接続されていて、成膜時に成膜室8内を所定の真空度（減圧雰囲気）に保てるようになっている。

【0061】また、成膜室8はゲートバルブ15を介してローダー、アンローダーや、他の工程の作業室との間で基板を搬送するための真空作業室16と接続されてい

る。この真空作業室16は、成膜室8から大気下にさらすことなく、ワークを搬送することができるようになっている。

【0062】本発明の成膜装置は、例えば図2に示すような有機EL素子の製造装置の一部として使用すると、特に好ましい結果を得ることができる。図2において、有機EL素子の製造装置は、ロボットアーム62を有する真空搬送室31に連結されているローダー室21と、第1の蒸着室32と、第2の蒸着室33と第1のスパッタ室34と、第2のスパッタ室35と、アンローダ室41とを有する。

【0063】また、これらローダー室21と、第1の蒸着室32と、第2の蒸着室33と第1のスパッタ室34と、第2のスパッタ室35と、アンローダ室41と、真空搬送室31とは、それぞれゲートバルブ21b、32a、33a、34a、35a、41bとを介して接続され、それぞれの作業室（ローダー室、第1の蒸着室、第2の蒸着室、第1のスパッタ室、第2のスパッタ室、アンローダ室）内の雰囲気と、真空搬送室の雰囲気を遮断できるようになっている。

【0064】ローダ室21は、ITO等の陽電極が形成、パターニングされた基板を搬入するための作業室であり、真空作業室62と外部の大気雰囲気との緩衝室の役割を有する。第1の蒸着室32および第2の蒸着室33は、有機EL素子の有機層等の成膜を行うための作業室であり、これらの作業室の少なくとも1室に本発明の成膜装置を有するとよい。また、第1のスパッタ室34および第2のスパッタ室35は、有機EL素子の陰電極、保護電極、配線電極等の機能性薄膜を成膜する作業室である。さらに、アンローダ室41は、基板上に種々の機能性薄膜が形成された有機EL構造体を搬出して、次の工程へ受け渡すための作業室である。

【0065】真空搬送室31は、所定の真空度に保持されるとともに、複数のアームa、b、cを有するロボットアーム61を有し、各作業室（ローダー室、第1の蒸着室、第2の蒸着室、第1のスパッタ室、第2のスパッタ室、アンローダ室）に基板を搬入したり、搬出したりして、外部雰囲気から遮断された状態で、各作業室間での基板の受け渡しができるようになっている。このロボットアーム61は、その基部が図中矢印で示される方向に回転するとともに、その間接数に応じた自由度により、上下、左右、前後に動作することができる。

【0066】図示例の製造装置を用いることにより、有機EL素子を極めて効率的に製造することができる。また、各作業室は、図示例では、真空蒸着室、スパッタ室をそれぞれ2つ配置しているが、製造する有機EL素子の素子構成により、成膜室の数、種類は適宜調整することができる。また、ローダー室21、アンローダ室41には、それぞれ前工程、後工程の作業室が連結されるようになっている。また、

【0067】図1の成膜装置についてさらに詳細に説明すると、原料貯液槽2にはガス流路11を介してN<sub>2</sub>等の搬送用ガスが所定量供給される。このガス流路11は必要な量の気体を搬送可能なものであれば特に限定されるものではなく、パイプ状やホース状、あるいはダクト状のものであってもよい。その材質も、従来より液体（有機溶媒）搬送用に用いられてきた材質を用いることができ、好ましくはステンレス、銅、アルミニウム等の金属材料等を用いることができる。

【0068】原料貯液槽2内部には原料溶液1が貯留されていて、ガス流路11から搬送用ガスが導入されるとその圧力により原料流路12を介してマスフローコントローラ3に搬送される。このマスフローコントローラは、質量流量計を備える。この質量流量計は、例えば、図5に示すような基本構成となっている。

【0069】図5は、マスフローコントローラ3の一部断面概略図である。図において、マスフローコントローラ内部にあって、原料流路12、13と接続されている主流路301と、副流路302とを有する。いま、矢印の方向より原料溶液が流れてきたとすると、主流路301内に流れる原料溶液流の他、副流路304に流れる原料溶液流を生じる。副流路304には、2つのコイルL1、L2が巻回されていて、抵抗R1、R2、R3、R4により構成されているブリッジ回路の抵抗R1、R2の両端にそれぞれ接続されている。このブリッジ回路は、可変抵抗R3により、所定の条件（初期状態、定常状態等）で平衡となるように設定されている。コイルL1、L2は、図示しない電流源により、所定の発熱量で加熱されるようになっている。

【0070】ここで、ブリッジ回路が平衡状態のとき、副流路304内に原料溶液が流れると、コイルL1、L2の間で温度に差が生じる。この温度差は、コイルL1、L2の抵抗値の差となってあらわれ、ブリッジ回路の平衡が崩れ、アンプAmpの入力端子間に電位差が生じる。この電位差は、副流路304を流れる原料溶液の流量に比例し、副流路304と主流路301は所定の流量比で原料溶液が流れることから、全体の流量およびその変化をアンプAmpの入力端子間に与えられる電位差により把握することができることになる。そして、この流量情報は、アンプAmpにより増幅され、可動弁302の制御装置305に与えられる。制御装置305は、アンプAmpより与えられた流量情報により可動軸303を制御し、可動弁302の開度を調整して、主流路301内を流れる原料溶液が所定の流量となるように制御する。このようにして、マスフローコントローラ3は、正確な流量制御ができるようになっている。なお、上記例ではブリッジ回路が平衡状態であるときを基準として説明したが、必ずしもこれに限られるものではなく、所定の電位差を有する状態を基準としてもよい。

【0071】マスフローコントローラ3により正確な

流量に調整された原料溶液は、原料流路13を介して蒸発皿4に搬送、導入され、気化される。

【0072】蒸発皿4のより具体的な構成例を図3、4に示す。なお、図4は図3のA-A'一部断面矢視図である。図示例の蒸発皿4は、本体4とこの本体4に形成された凹部4aと、この凹部4aをそれぞれ連結している溝4bとを有する。蒸発皿4上に供給された原料溶液は、溝4bにより各凹部4aに均一に供給されるとともに、図4からわかるように、溝4bより、凹部4aの方が深くなっているため、最終的に凹部4a内に貯留されている原料溶液が蒸発するようになる。

【0073】図1において、基板5は、蒸発皿4上に配置されている。基板5と蒸発皿4の距離は、蒸発皿4に供給された原料溶液の最上端面ないし蒸発基準面から、好ましくは10～160mmの範囲である。ここで、蒸発基準面とは、供給された原料溶液の蒸発面として近似される基準面をいう。

【0074】気化した原料の有機材料は、基板5上に成膜されることになる。

【0075】蒸発皿4の加熱手段は、加熱制御装置7と接続され、この加熱制御装置7から与えられる電力（電流）により、加熱制御される。加熱制御装置7は、蒸発皿4に配置されている温度検出手段6を有し、この温度検出手段6から与えられる蒸発皿4の温度情報に応じて、加熱手段に与えられる電力（電流）を制御する。

【0076】加熱制御装置7は、制御部として汎用のマイクロプロセッサ（MPU）と、このMPUと接続されている記憶媒体（ROM、RAM等）上の制御アルゴリズム等により構成することができる。また、CISC、RISC、DSP等プロセッサの態様を問わず使用可能であり、その他ASICや、あるいは一般のIC等による論理回路の組み合わせ等や、オペアンプ等を用いたアナログ演算回路により構成することもできる。そして、この制御部からの制御信号により、バイポーラトランジスタ、MOS-FET、トライアック、UJT、SCR等の半導体素子を備えた電力（電流）制御部を制御すればよい。

【0077】温度制御の方式は、温度制御を適切に行えるものであれば特に限定されるものではないが、例えば、PID（proportional integral derivative）制御方式を応用した、ハードウェア（アナログ、デジタル回路）、あるいはこれを展開した制御アルゴリズム等を用いるとよい。

【0078】温度検出手段6は、原料気化手段の温度を適正に検出するものであればよく、例えば、白金-白金ロジウム、タングステン-タングステンレニウム等の熱電対等が挙げられる。

【0079】成膜室内の成膜時の雰囲気は、通常、真空状態とする。成膜時の圧力は好ましくは $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-3}$ Paで、加熱温度は、有機材料の気化温度より高

く、通常、200～500℃、特に250～450℃程度が好ましい。

【0080】なお、上記構成要素のうち、原料供給源は、主に原料貯液槽2および搬送路11から供給される搬送用ガスにより構成され、供給量調整手段は、主にマスフローコントローラ3により構成され、原料気化手段は、主に蒸発皿4により構成される。また、原料気化手段の加熱手段は、主に蒸発皿4に配置されたヒータないしハロゲンランプなどの電熱球と、温度検出手段6および加熱制御装置7により構成される。

【0081】

【実施例】図1～図3に示した構成の成膜装置を作成し、有機EL素子の発光層用有機薄膜を成膜した。

【0082】対応する基板は200mm角サイズとし、蒸発皿の大きさは300mm角とした。蒸発皿と基板間の距離は100mmに設定した。蒸発皿の材質はアルミニウムとし、図3に示す配置で、図4の断面形状を持つ凹部を形成した。それぞれの凹部は幅2mm、深さ2mmの溝で接続した。Oリングシールにより真空槽内部に導入された石英ガラス管内にハロゲンランプを配置し、大気側より石英ガラス管を通じて蒸発皿を加熱する加熱機構を設けた。ハロゲンランプの有効発光波長は350mmとした。

【0083】蒸発皿下面には熱電対を配置して温度測定を行い、温度調整器を用いてハロゲンランプ出力のPID制御を行った。マスフローコントロール方式による原料溶液の供給量調整手段を3系統設けた。

【0084】図2に示すように、このような蒸着室2室32、33と、スパック室2室34、35、ローダー室21、アンローダー室41とを真空搬送室31を介して接続した。各室と真空搬送室の間には真空ゲートバルブを設けた。各室は、それぞれ独立した真空排気系を配置した。蒸着室32、33とスパック室34、35にはシャドーマスクの保持機構と基板アライメント機構を設けた。真空搬送室31には、多関節型の基板搬送用ロボット61を設けた。

【0085】基板として200mm角の無アルカリガラスを用い、基板上にITO電極層などを所定のパターンに成膜・パターン形成した。基板上に形成されたパターンは、 $64 \times 128$ ドットのフルカラーマトリクスに対応したパターンであり、各画素の大きさは300mm角とし、各副画素の大きさは $90 \times 300$ mmとして、RGB各色はライン状の配置とした。

【0086】基板表面をUV/O<sub>3</sub>処理した後、成膜装置のローダー室21に投入した。この時、真空搬送室31、蒸着室32、33、スパック室34、35はそれぞれ $1 \times 10^{-4}$ Pa以下に排気しておいた。ローダー室21を10Pa以下に排気し、真空搬送室31とローダー室21間のゲートバルブ21aを開け、基板を真空搬送室31に搬送した。次いで、真空搬送室31とローダー室2

1間のゲートバルブ21aを閉じた後に、真空搬送室31と第1の蒸着室32間のゲートバルブ32aを開け、基板を第1の蒸着室32に搬送した。

【0087】第1の蒸着室32には、各画素の大きさに相当する開口部が形成された、磁性材のシャドーマスクを配置した。基板とシャドーマスクとをアライメントした後に、磁界発生手段として電磁マグネットにより基板とシャドーマスクを密着させた。

【0088】テトラヒドロフラン（THF：沸点＝80℃）に1.0g/mlの濃度に溶かした4,4',4"-トリス（-N-（3-メチルフェニル）-N-フェニルアミノ）トリフェニルアミン（以下、m-MTDATA）、THFに1.0mg/mlの濃度に溶かしたN,N'-ジフェニル-N,N'-m-トリル-4,4'-ジアミノ-1,1'-ビフェニル（以下、TPD）、THFに0.5mg/mlの濃度に溶かしたトリス（8-キノリノラト）アルミニウム（Alq3：気化温度＝300℃）を準備し、それぞれマスフロー系1、2、3の供給源に500mlずつ投入した。

【0089】第1の蒸着室32内にN<sub>2</sub>を導入し、圧力を100000Paまで上げた後に、マスフロー系（1）よりm-MTDATA溶液12mlを蒸発皿の各凹部に均等に供給した。蒸着室を再排気し、1×10<sup>-4</sup>Pa以下となったところで、蒸着皿を300℃に加熱し、m-MTDATAを基板に蒸着した。

【0090】次いで、同様にマスフロー系（2）により、TPD溶液を4.8ml供給し、蒸発皿を300℃に加熱してTPDを蒸着した後に、基板を第2の蒸着室に搬送した。第2の蒸着室には、各画素当たり、一つの副画素に対応した開口部が形成された、磁性材のシャドーマスクを配置した。

【0091】赤色発光層用の原料として、ジシアノメチルピラン（以下、DCM：気化温度＝290℃）を1重量%ドープしたAlq3をTHFに0.5mg/mlの濃度に溶かして、マスフロー系1の供給供給源に500ml投入した。

【0092】緑色発光層用の原料として、クマリン6を1重量%ドープしたAlq3をTHFに0.5mg/mlの濃度に溶かして、マスフロー系2の供給源に500ml投入した。

【0093】青色発光層用の原料としてDPAをTHFに1.0mg/mlの濃度に溶かして、マスフロー系3の供給源に500ml投入した。

【0094】まず、赤色発光層に相当する基板上の副画素位置と、シャドーマスクの開口部とが相対するように基板とシャドーマスクをアライメントして基板に密着させた。第1の蒸着室の場合と同様に、マスフロー系（1）よりAlq3+DCM溶液を24ml供給し、蒸発皿を300℃に加熱して蒸着した。

【0095】次いで、緑色発光層に相当する基板上の副

画素位置と、シャドーマスクの開口部とが相対するように基板とシャドーマスクをアライメントして基板に密着させた。

【0096】同様に、マスフロー系（2）より、Alq3+クマリン6溶液を24ml供給し、蒸発皿を300℃に加熱して蒸着した。

【0097】更に、青色発光層に相当する基板上の副画素位置と、シャドーマスクの開口部とが相対するように基板とシャドーマスクをアライメントして基板に密着させた。

【0098】同様に、マスフロー系（3）より、DPA溶液を12ml供給し、蒸発皿を300℃に加熱して蒸着した後に、基板を第1の蒸着室32に搬送した。

【0099】第1の蒸着室32では同様のアライメントを行い、マスフロー系（3）よりAlq3溶液を4.8ml供給し、蒸発皿を300℃に加熱して蒸着した。

【0100】次いで、基板を第1のスパッタ室に搬送し、Al-Li（Li：7at%）を5nmの厚さにスパッタし、さらに基板を第2のスパッタ室に搬送してAlを200nmの厚さにスパッタした。この際、スパッタ室では上側金属電極パターンが形成する部分に相当する開口を有したシャドーマスクを配置し、蒸着室の場合と同様にアライメント、密着を行った。

【0101】得られた有機ELディスプレイを10mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で時分割駆動したところ、RGBすべての画素が正常に発光し、動作することが確認できた。また、基板-蒸発源間距離400mm程度で基板を回転しながらクヌーセンセルを用いて蒸着した場合と同様の膜厚分布が得られながら、その材料使用量は1/5程度に抑えられた。

【0102】なお、上記実施例では、加熱手段としてハロゲンランプを用いたが、蒸発皿に密着形成したヒーターによる加熱を用いた場合にも同様の結果が得られた。

【0103】

【発明の効果】以上のように本発明によれば、比較的大きな面積の基板に対応し、蒸発源-基板間の距離を短く設定することが可能であり、1回の成分分に対応する材料を供給可能であって、有機薄膜の塗り分け作業が簡単に行え、混合物やドーピングされた有機材料にも対応でき、しかも比較的低い温度の蒸着にも対応可能な有機薄膜の製造装置および製造方法を実現することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の製造装置の基本構成例を示す概略構成図である。

【図2】有機EL素子の製造装置の構成例を示す概略構成図である。

【図3】蒸発皿の具体的な構成例を示す断面図である。

【図4】図3の断面A-A'一部矢視図である。

【図5】マスフローコントロールシステムの構成例を示す断面図である。

10

20

30

40

50

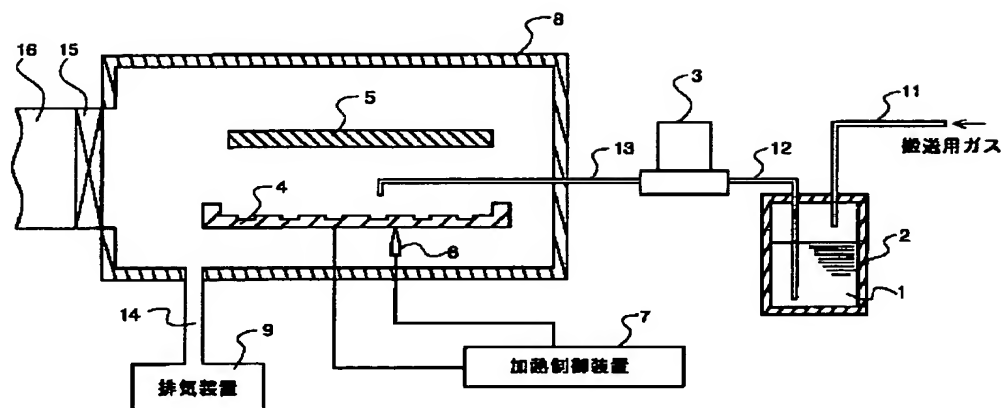


## 【符号の説明】

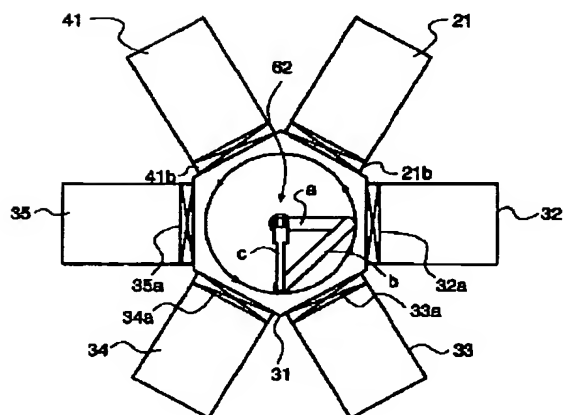
- 1 原料溶液  
2 原料貯液槽  
3 マスフローコントローラ

- 4 蒸発皿  
5 基板  
6 温度検出手段  
7 加熱制御装置

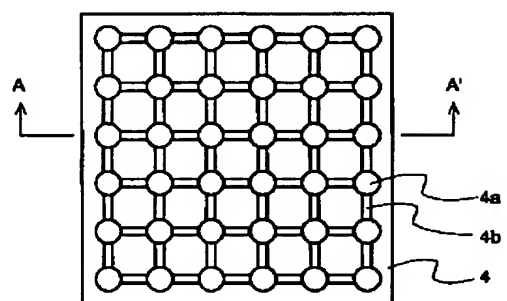
【図1】



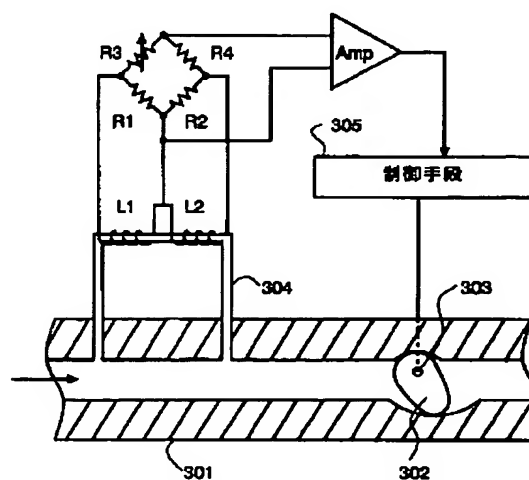
【図2】



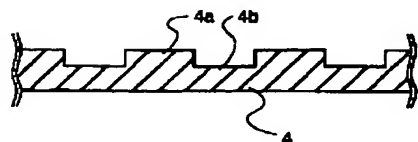
【図3】



【図5】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 荒井 三千男

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティ  
ーディーケイ株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB18 EB00 FA01 FA03

4K029 BA62 BD01 CA01 CA05 DA01

DB11 DB17